

Manipulation von Spinzuständen in einzelnen II-VI Halbleiter-Quantenpunkten

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)
im Fach Mathematik

eingereicht an der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I
Humboldt-Universität zu Berlin

von
Herr Dipl.-Phys. Andreas Hundt
geboren am 25.04.1975 in Hamburg

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin:
Prof. Dr. Christoph Marksches

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I:
Prof. Dr. Christian Limberg

Gutachter:

1. Prof. Dr. F. Henneberger
2. Prof. Dr. O. Benson
3. Prof. Dr. G. Bacher

eingereicht am: 14. Dezember 2006
Tag der mündlichen Prüfung: 9. Oktober 2007

Abstract

Semiconductor quantum dots (QD) are objects on the nanometer scale, where charge carriers are confined in all three dimensions. This leads to a reduced interaction with the semiconductor lattice and to a discrete density of states.

The spin state of a particle defines the polarisation of the emitted light when relaxating to an energetically lower state. Spin exchange and optical transition selection rules (conservation law for spin) define the optical control of spin states. In the examined QD in II-VI semiconductor systems the large polar character of the bindings enables to observe particle interactions by spectroscopy of the photo-luminescence (PL), making QD attractive for basic research.

This work subjects in its first part single negatively charged non-magnetic QD. The odd number of carriers allows to study the latter in an unpaired state. By using polarization-resolved micro-PL spectroscopy, the spin-states of single, isolated QD can be studied reproducibly. Of special interest are exchange interactions in this few-particle system named trion. By excitation spectroscopy energetically higher states can be identified and characterized. The exchange interactions appearing here lead to state mixing and fine structure patterns in the spectra. Couplings in excited hole states show the way to the *optical orientation* of the resident electron spin. The spin configuration of the *trion triplet state* can be used to *optically control* the resident electron spin.

Semimagnetic QD are focused in the second part of this work. The interaction with a paramagnetic environment of manganese spins leads to new magneto-optical properties of the QD. They reveal on a single dot level by line broadening due to *spin fluctuations* and by the giant Zeeman effect of the dot ensemble. Of special interest in this context is the influence of the reduced system dimension and the relatively larger surface of the system on the exchange mechanisms. The strong temperature dependence of the spin environment is used to systematically study the *spin-lattice relaxation*. Here, the PL of the QD ensemble monitors the spin temperature. The time constants in the μs range define the range for the incoherent switching of the Mn magnetization.

Keywords:

quantum dots, II-VI semiconductors, exchange interaction, spin states

Zusammenfassung

Halbleiter-Quantenpunkte (QP) sind Objekte, in der Größenordnung von Nanometern, in denen wenige Ladungsträger (Elektronen bzw. Löcher) in alle drei Raumrichtungen durch eine Potentialbarriere eingesperrt sind. Dies führt zu einer reduzierten Wechselwirkung mit dem Halbleiter-Gitter und zu einer diskreten Zustandsdichte der lokalisierten Teilchen.

Der Spinzustand eines Teilchens bestimmt die Polarisation des Lichts, das bei einem Energieübergang emittiert wird; Spin-Wechselwirkungen und optische Auswahlregeln (Spinerhaltung) bestimmen zusammen wesentlich die optische Kontrolle von Spinzuständen. In den untersuchten QP in II-VI Halbleitersystemen führt die große Polarität der Bindung dazu, dass viele Wechselwirkungen direkt durch Spektroskopie der Photolumineszenz (PL) zu beobachten sind, was sie für die Grundlagenforschung attraktiv macht.

Diese Arbeit befasst sich im ersten Teil mit einfach negativ geladenen nichtmagnetischen QP. Die ungleiche Anzahl von Elektronen und Löchern erlaubt die Untersuchung einzelner, ungepaarter Ladungsträger. Mit Hilfe der polarisationsaufgelösten Mikro-PL Spektroskopie werden die Spinzustände einzelner QP reproduzierbar untersucht. Im Mittelpunkt stehen dabei Wechselwirkungen der Teilchen untereinander. Über die Anregungsspektroskopie werden höherangeregte Zustände identifiziert und charakterisiert. Die hier auftretenden Austauschwechselwirkungen führen zur Mischung von Zuständen und zu Feinstrukturen im Spektrum. Kopplungen im angeregten Lochzustand zeigen die Möglichkeit zur *optischen Orientierung* des residenten Elektrons auf. Die Spinkonfiguration der Elektronen im *Triplettzustand* erlaubt es, die Elektron-Loch Austauschwechselwirkungen des Trions zu untersuchen.

Der zweite Teil dieser Arbeit befasst sich mit semimagnetischen QP. Hier sorgt die Wechselwirkung mit einer paramagnetischen Umgebung von Manganspins für neue magneto-optische Eigenschaften. Diese zeigen sich auf der Ebene einzelner QP in Form von Linienverbreiterungen durch *Spinfluktuationen* als auch durch den Riesen-Zeeman-Effekt am QP-Ensemble. Besonderes Augenmerk liegt hier auf dem Einfluss der reduzierten Dimensionalität und der größeren Oberflächen der QP auf die Austauschmechanismen. Die starke Temperaturabhängigkeit der Spinumgebung wird ausgenutzt, um das Spinaufheizen als auch die *Spin-Gitter-Relaxation* systematisch zu studieren. Dabei wird die PL der QP als Monitor benutzt.

Schlagwörter:

Quantenpunkte, II-VI Halbleiter, Austauschwechselwirkung, Spinzustände

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Das Modell des Exzitons	5
2.2	Das Exziton in (un-)geladenen Quantenpunkten	6
2.2.1	Ungeladener Quantenpunkt	8
2.2.2	Quantenpunkt mit residentem Ladungsträger	8
2.3	Verdünnte magnetische Halbleiter	12
2.3.1	Superaustausch zwischen magnetischen Ionen	13
2.3.2	Austauschwechselwirkung mit freien Ladungsträgern	15
3	Experimentelle Grundlagen	19
3.1	Die Proben	19
3.1.1	II-VI Verbindungshalbleiter	19
3.1.2	Nichtmagnetische Quantenpunkte	21
3.1.3	Probenstruktur verdünnter magnetischer Quantenpunkte	22
3.1.4	Laterale Strukturierung	23
3.1.5	Zeitliche Stabilität der Photolumineszenz	25
3.2	Experimentelle Techniken	26
3.2.1	Messungen im Magnetfeld	26
3.2.2	Spektroskopie einzelner Quantenpunkte	28
4	Nichtmagnetische geladene Quantenpunkte	35
4.1	Motivation: Negative zirkulare Polarisierung am QP-Ensemble	36
4.2	Identifikation von Trionen	38
4.3	Schwerloch-Leichtloch Kopplung: Polarisierungseigenschaften	41
4.3.1	Polarisierung des Trion-Grundzustandes	41
4.3.2	Trion mit angeregtem Lochzustand	44
4.3.3	Optische Orientierung des residenten Elektrons im Magnetfeld	47
4.4	Geladene Biexzitonen in Quantenpunkten	51

4.5	Triplettzustand des Trions	53
4.5.1	Anisotrope Austauschwechselwirkung	55
4.5.2	Angeregtes Trion im externen Magnetfeld	62
4.5.3	Energetische Position des Triplettzustandes	66
4.5.4	Optische Kontrolle des Spins des residenten Elektrons .	69
5	Semimagnetische Quantenpunkte	75
5.1	Magneto-optische Charakterisierung	78
5.2	Mn-Abhängigkeit des mittleren Mn-Spins	81
5.3	Abhängigkeit der Linienbreite von der Mn-Konzentration . . .	82
5.4	Quantifizierung der statischen Untersuchungen	85
5.5	Spintemperatur und Spin-Gitter-Relaxation	91
5.5.1	Photoinduziertes Heizen	92
5.5.2	Spin-Gitter-Relaxation	98
6	Zusammenfassung	107
A	Schwerloch-Leichtloch-Kopplung	123
B	Mn-Gesamtspin	127
	Danksagung	131

Kapitel 1

Einleitung

Die ständige Verkleinerung der Strukturgrößen von Bauelementen für die Informationsverarbeitung ist notwendig, um den wachsenden Anforderungen nach schnellerer Verarbeitung als auch Übertragung gerecht zu werden. Zunehmend führt die reine Verkleinerung der klassischen Mikrostruktur zu Problemen [1] und die Bedeutung von Quanteneffekten nimmt zu. Das erfordert neue Konzepte und führte mit den technologischen Möglichkeiten, nanometergenaue Strukturen herzustellen, schließlich zur Realisierung von Quantenpunkten. Sie werden auf vielerlei Weise synthetisiert, die für die Grundlagenforschung wichtigste Gruppe umfasst die von einer Halbleitermatrix umgebenen selbstorganisierten Quantenpunkte, mit denen sich auch diese Arbeit beschäftigt. Quanteneffekte treten auf, wenn die Ausdehnung des Systems in die Größenordnung der de-Broglie Wellenlänge der Teilchen kommt, daher umfassen typische Vertreter solcher Systeme in Halbleitern nur wenige $10^2 \dots 10^5$ Atome, die Abmessungen liegen im Bereich weniger Nanometer.

Quantenpunkte im speziellen besitzen ein hohes Potential für Anwendungen sowohl als elektronische wie auch als optische Bauelemente [2]. Auf ihrer Basis konnten Halbleiterlaser mit niedrigen Schwellströmen und hoher Effizienz realisiert werden [3, 4]. Mit Hilfe von QP konnten Ein-Photon-Emitter [5, 6] erzeugt werden, ein wichtiger Schritt in Richtung auf abhörsichere Informationsübertragung und Kryptographie [7, 8]. Durch verbesserte Wachstumstechnologien ist es möglich, die optischen und elektronischen Eigenschaften von Quantenpunkten in gewissen Grenzen maß zu schneiden [9] und so z.B. die Emissionswellenlänge durch Variation der Größe zu verändern [10]. Die Realisierung z.B. eines Ein-Elektron-Transistors [11] zeigt auf, dass QP die Möglichkeit zur Manipulation einzelner Ladungsträger bieten.

Neben den Anwendungsmöglichkeiten sind Quantenpunkte als Objekte am Schnittpunkt zwischen Atom- und Festkörperphysik Gegenstand der

Grundlagenforschung. Durch das sukzessive Einfüllen von Elektronen in den QP, gesteuert durch ein äußeres elektrisches Feld, wird gezeigt [12, 13], dass sie ein diskretes Energiespektrum besitzen und werden daher gern als künstliche Atome bezeichnet [14]. So konnten viele Effekte nachgewiesen werden, die auch in der Atomphysik bekannt sind, wie z.B. Zeeman-Effekt [15] und Starkeffekt [16]. Einige Effekte lassen sich an Quantenpunkten unter Bedingungen untersuchen, die in der Atomphysik schwer zugänglich sind. So sorgen die leichteren effektiven Massen und das relativ flache Coulomb-Potential im Halbleiter dafür, dass magnetische und Coulomb-Effekte in derselben Größenordnung liegen. Ein anderer Effekt ist die Austauschwechselwirkung zwischen ununterscheidbaren Teilchen. In der Atomhülle sorgt dieser Vielteilcheneffekt für eine Feinstruktur der Elektronenenergien. Das Pendant dazu in Halbleitern bzw. Quantenpunkten ist die Elektron-Loch Austauschwechselwirkung, die im Quasiteilchen-Bild behandelt wird und großen Einfluss auf die optischen Eigenschaften hat. Die Halbleiterumgebung sorgt daneben für zusätzliche Wechselwirkungen, insbesondere mit Phononen. Eine Reduzierung dieser Effekte für die Untersuchung thermisch nicht beeinflusster Phänomene macht im Allgemeinen tiefe Temperaturen erforderlich, denn dort ist z.B. ein Einfluss auf die Bandkantenenergie gering.

Die nulldimensionale Struktur hat im Vergleich zu mehrdimensionalen Nanostrukturen den Vorteil einer reduzierten Wechselwirkung der Ladungsträger mit ihrer (Phonon-)Umgebung. So werden lange Spinlebensdauern [17] gemessen und kohärente Phänomene beobachtet [18]. Zusätzlich bietet die starke Lokalisierung einzelner Ladungsträger die Möglichkeit zur gezielten Beeinflussung der physikalisch relevanten Prozesse.

Abb. 1.1 veranschaulicht die Veränderungen bei Reduzierung der Dimension des Systems, insbesondere die elektronische Zustandsdichte (DOS^1). Dies führt zu zunehmend diskreten Zuständen, wodurch die Wechselwirkung mit der Umgebung reduziert wird. Das macht QP zu einem möglichen Kandidaten zur Implementierung eines Quantencomputers [19]. Im Spintronik-Konzept [20] soll über die Elektronik hinaus der Teilchenspin als Informationsträger genutzt werden. Hier bietet sich an, in Quantenpunkten zusätzlich zur Ladung auch den Spin einzelner Ladungsträger als System für sog. Spintronik-Bauelemente zu verwenden. Weiter lässt sich im Rahmen der Quantenmechanik die Superposition von zwei Zuständen (z.B. Spinzustände) als sog. qubit interpretieren und möglicherweise für Rechenoperationen in zukünftigen Quantencomputern nutzen [21, 22].

In diesem Zusammenhang ist es nötig, die grundlegenden Wechselwirkungen von Ladungsträgern in einem Quantenpunkt zu kennen. Die Unter-

¹ *engl.* density of states

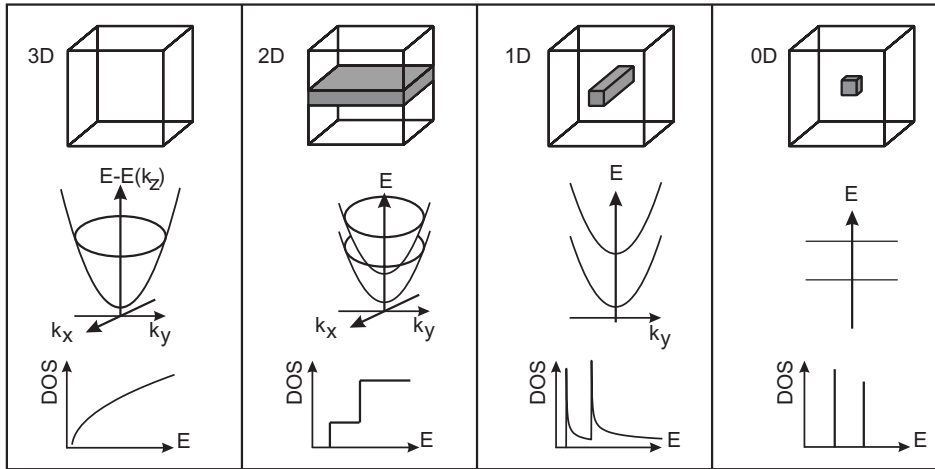


Abbildung 1.1: Schema von Halbleiterstrukturen mit unterschiedlicher Dimensionalität (oben). Mitte: zugehörige Energiedispersion $E(\vec{k})$. Unten: elektronische Zustandsdichte (DOS). Von links nach rechts – Volumenhalbleiter (3D), Quantengraben (2D), Quantendraht (1D) und Quantenpunkt (0D) – erhöht sich der diskrete Charakter der elektronischen DOS.

suchung einzelner Quantenpunkte hat den Vorteil, ensemble-bedingte Verbreiterungen von physikalischen Messgrößen zu überwinden. Diese Verbreiterungen treten durch statistische Schwankungen in der Zusammensetzung und in der Größenverteilung vieler Quantenpunkte auf. Der diskrete Charakter offenbart sich erst bei der Untersuchung einzelner Objekte.

In dieser Arbeit erfolgt die Untersuchung von Quantenpunkten in II-VI Halbleitern auf Basis von ZnSe und CdSe. Die große Polarität der Bindungen führt zu großen Austausch- und Bindungsenergien. Methoden sind die stationäre und die zeitaufgelöste optische Spektroskopie. Bei der Rekombination der optisch injizierten Ladungsträger wird die Information der beteiligten Ladungsträger, z.B. deren Spinstruktur, auf das Photolumineszenz-Signal abgebildet. Durch Analyse der Polarisation der Photolumineszenz lassen sich daher Rückschlüsse auf die physikalischen Vorgänge ziehen. Das gewählte Materialsystem (siehe Kap. 3.1) bestimmt den Wellenlängenbereich der Untersuchungen im blaugrünen bis grüngelben Spektralbereich (480 nm bis 560 nm). Diese Arbeit thematisiert die Wechselwirkung von Quantenpunkten mit ihrer Umgebung, bzw. die Wechselwirkung lokalisierter einzelner Ladungsträger untereinander in einem nanoskopischen Quantenobjekt.

Im nächsten Kapitel erfolgt zunächst eine Einführung in die grundlegenden Konzepte, insbesondere des Exzitons als gebundener Zustand von Elektron und Loch. Das Kapitel 3 umfasst die Vorstellung des Materialsystems

sowie der benutzten experimentellen Techniken. Die Ergebnisse der Experimente finden sich in den darauf folgenden zwei Kapiteln. Zunächst werden einzelne geladene Quantenpunkte untersucht. Durch die ungerade Anzahl der beteiligten Fermionen greift hier das Kramers-Theorem und die zugehörigen Zustände sind entartet. Das Kapitel umfasst die Identifikation geladener QP anhand ihres Spektrums und ihre Charakterisierung. Im Mittelpunkt steht die Untersuchung höher angeregter Zustände. Es bietet sich die Möglichkeit, den Spin einzelner Elektronen zu untersuchen und zu manipulieren, was sie im Hinblick auf spintronische Anwendungen interessant erscheinen lässt. Die optische Orientierung des Spins vom residenten Ladungsträger durch geschickte Kombination von Polarisation und Energie der Anregung bildet den Abschluss dieses Kapitels.

Ein zweiter Teil von Experimenten beschäftigt sich mit der Wechselwirkung einzelner, im QP lokalisierter Ladungsträger mit einer magnetischen Spinumgebung. Eine gezielte Probenmanipulation führt zu neuen magneto-optischen Eigenschaften und Effekten. Zwei Zugänge werden zurzeit bei der Realisierung entsprechender Strukturen verfolgt. Zum einen wird nichtmagnetisches CdSe in einer magnetischen ZnMnSe Barriere untersucht [23]. Ergebnisse lassen auf eine Wechselwirkung der lokalisierten Ladungsträger mit Mn-Ionen schließen. Die Wechselwirkung erfolgt in dem Gebiet, in dem die Wellenfunktion der eingesperrten Teilchen in die semimagnetische Barriere eindringt. In dieser Arbeit werden, wie in Kap. 3.1.3 geschildert, CdMnSe QP verwendet. Der Einbau von Mn in die QP führt zu einer größeren Wechselwirkung, da der Überlapp zwischen den Wellenfunktionen der Mn-Ionen und der optisch erzeugten Ladungsträger an dem Ort erfolgt, an dem die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Letzteren am größten ist.

Der Einfluss eines Austauschfeldes auf ein Ensemble von Mn-Ionen manifestiert sich sowohl an einzelnen Quantenpunkten als auch am QP-Ensemble. Der große Einfluss der Temperatur auf das Mn-Ensemble führt zu einer Veränderung seiner Dynamik. Die Lumineszenz der Quantenpunkte fungiert hierbei als Thermometer und liefert Aussagen über die beteiligten Prozesse an der Spin-Gitter-Relaxation, die mit den Ergebnissen höher dimensionaler Nanostrukturen verglichen werden (Kapitel 5.5). An einzelnen semimagnetischen QP manifestieren sich statistische Fluktuationen der Mn-Spins um ihren Mittelwert in Linienbreiten im meV-Bereich (Kap. 5.3).

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

Dieses Kapitel beschreibt die wichtigsten physikalischen Grundlagen, die zum Verständnis der Ergebnisse notwendig sind.

Die grundlegende Anregung in einem Halbleiter erfolgt durch Interbandabsorption. Das so erzeugte Coulomb-korrelierte Elektron-Loch Paar wird als Exziton bezeichnet (vgl. Kap. 2.1). Bei deren Lokalisation in den Quantenpunkten treten verschiedene Besonderheiten auf, da diese Quantenpunkte geladen oder ungeladen sein können und zusätzlich die Kristallsymmetrie einen großen Einfluss auf die Spinstruktur der Teilchenkomplexe hat.

2.1 Das Modell des Exzitons

In einem Halbleiter kann durch Absorption einer elektromagnetischen Welle (Photon) mit $\hbar\omega \geq E_g$ ein Elektron aus dem Valenz- in das Leitungsband angeregt werden. E_g bezeichnet dabei die Energielücke des Halbleiters beim Wellenvektor $\vec{k} = 0$. Durch Coulomb-Anziehung bildet sich ein gebundener Elektron-Loch-Zustand, das Exziton. Dieser Komplex lässt sich unter gewissen Voraussetzungen¹ analog einem Wasserstoffatom beschreiben mit einer Bindungsenergie E_{Ryd}^X und einem exzitonischen Bohrradius a_B^X , die von der Dimension des Halbleiters abhängen. Im ZnSe-Volumenhalbleiter beträgt beispielsweise $E_{Ryd}^X = 20$ meV und $a_B^X = 4.5$ nm [24]. Zwei Exzitonen können sich binden und ein Exzitonmolekül bilden, ähnlich einem Wasserstoffmolekül. Ein solcher Komplex heißt Biexziton.

Die 3D-Exziton-Wellenfunktion lässt sich aufteilen in eine ebene Welle, die aus der Periodizität des Gitters hervorgeht und einen Bloch-Anteil. Letzterer kann auf das Zentrum der Brillouinzone beschränkt werden, weil die

¹ $\vec{k} = 0$, direkte Bandlücke, parabolische Näherung der Bänder

optischen Übergänge näherungsweise bei $k = 0$ stattfinden. Dieser sogenannte Blochfaktor bestimmt die Polarisationsseigenschaften. Die Spinstruktur des Exzitons ist durch die Bandstruktur des Halbleiters gegeben. Bei der hier vorliegenden Zinkblende-Struktur (vgl. Kap. 3.1.1) bestimmen die s-artigen Orbitale des Kations (Zn,Cd) den Charakter des Leitungsbands am Γ -Punkt ($\vec{k} = 0$). Das Elektron hat den Spin² $s_e = 1/2$ mit den beiden möglichen Projektionen $s_{e,z} = \pm 1/2$ auf die Quantisierungsachse in Wachstumsrichtung z . Die p-artigen Lochzustände des Valenzbandes mit der Drehimpulsquantenzahl $j_h = 3/2$ sind bei $\vec{k} = 0$ vierfach entartet, das durch Spin-Bahn-Wechselwirkung abgespaltene Band wird im Folgenden wegen der großen Energieaufspaltung nicht weiter betrachtet³. Die vier möglichen Projektionen $j_{h,z}$ gliedern sich aufgrund ihrer unterschiedlichen Bandkrümmung in zwei schwere Löcher mit $j_{hh,z} = \pm 3/2$ sowie zwei leichte Löcher mit $j_{lh,z} = \pm 1/2$. Sowohl durch Verspannungen als auch durch Potentiale bei Heterostrukturen kommt es zu einer Erniedrigung der Symmetrie. Dies führt zu einer energetischen Aufspaltung zwischen leichten und schweren Löchern. Da das Leichtlochband in den hier betrachteten niederdimensionalen Systemen energetisch höher⁴ liegt, wird es für den Augenblick vernachlässigt.

Die Exzitonen haben einen Gesamtdrehimpuls J , der sich aus dem der Elektronen und Löcher zusammensetzt. Wegen der bei der Rekombination des Exzitons zu berücksichtigenden Erhaltungssätze unterscheidet man zwischen hellen ($J_X = 1$) und dunklen ($J_X = 2$) Exzitonen. Erstere können strahlend rekombinieren, die dunklen Exzitonen sind optisch inaktiv. Die magnetische Quantenzahl des Exzitons lässt sich dementsprechend zu $J_{X,z} = \pm 1$ für helle und $J_{X,z} = \pm 2$ für dunkle Exzitonen aus $s_{e,z}$ und $j_{hh,z}$ zusammensetzen.

2.2 Das Exziton in (un-)geladenen Quantenpunkten

Die quantenmechanische Beschreibung des Quantenpunkts erfolgt mit der Schrödingergleichung, die im hier vorliegenden nulldimensionalen Fall das einschränkende Potential⁵ $V(\vec{r})$ in alle drei Raumrichtungen enthält. Für ein

²Drehimpulse werden immer in Einheiten von \hbar angegeben

³Für ZnSe beträgt die Spin-Bahn-Aufspaltung ca. 400 meV [24]

⁴Die kleinste Bandlücke am Γ -Punkt ergibt sich für Elektronen mit schweren Löchern

⁵engl: Confinement

einzelnes Teilchen (Elektron oder Loch) lässt sich schreiben:

$$\mathcal{H}_{\mathbf{v}}\Psi(\vec{r}_{\mathbf{v}}) = \left[\frac{\hbar^2}{2m_{\mathbf{v}}} \nabla^2 + V_{\mathbf{v}}(\vec{r}) \right] \Psi(\vec{r}_{\mathbf{v}}) = E_{\mathbf{v}}\Psi(\mathbf{r}_{\mathbf{v}}) . \quad (2.1)$$

Hierbei bezeichnet der Teilchenindex $\mathbf{v} = e, h$ das Elektron oder das Loch⁶ und $m_{\mathbf{v}}$ seine effektive Masse. Gebundene Zustände können nur diskrete Energien $E_{\mathbf{v}}$ annehmen, Anzahl und Wert hängen stark von der genauen Form des Potentials ab. Bei den hier vorliegenden Quantenpunkten ist das einsperrende Potential am stärksten in der Wachstumsrichtung z . Es kann näherungsweise eine Quantengraben-Symmetrie angesetzt werden, die sich mit dem Wachstumsprozess begründen lässt (siehe Kap. 3.1). Daher kann die z -Richtung als Quantisierungsachse bei einigen Problemstellungen dienen.

Die Einsperrung von Elektron und Loch erfolgt auf ein QP-Volumen V_{QP} vergleichbar dem exzitonischen Bohrradius

$$\sqrt[3]{V_{\text{QP}}} \approx a_B^X, \quad (2.2)$$

deshalb ist der Abstand zwischen den beiden Teilchen hauptsächlich durch das Potential vorgegeben. In diesem Fall macht die Angabe eines Wellenvektors k keinen Sinn mehr (siehe auch Abb. 1.1) und das quantenmechanische Problem kann in den meisten Fällen auf den Γ -Punkt beschränkt werden.

Der Gesamthamiltonian für das Elektron-Loch Paar lässt sich wie folgt aufgliedern:

$$\mathcal{H}_X = \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_h + \mathcal{H}_{\text{Coul}} + \mathcal{H}_{\text{exch}} + \mathcal{H}_{\text{magn}} . \quad (2.3)$$

Das Einsperrungspotential in $\mathcal{H}_{e,h}$ liefert in den hier betrachteten QP den größten Beitrag, deshalb lässt sich das quantenmechanische Problem separat im Rahmen einer Einteilchennäherung für Elektron und Loch behandeln. Die Bezeichnung „Exziton“ wird trotz der dominierenden Einsperrungs-Energien im QP weiter verwendet.

Alle anderen Beiträge in (2.3) können störungstheoretisch behandelt werden: die Coulombwechselwirkung $\mathcal{H}_{\text{Coul}}$, die Wechselwirkung mit einem externen Magnetfeld $\mathcal{H}_{\text{magn}}$ und die Austauschwechselwirkung $\mathcal{H}_{\text{exch}}$. Durch das einsperrende Potential V kommt es zu einer Valenzband-Aufspaltung zwischen schweren und leichten Löchern.

Die letzten beiden Terme $\mathcal{H}_{\text{magn}}$ und $\mathcal{H}_{\text{exch}}$ in (2.3) sorgen für eine Feinstruktur und damit für eine teilweise Aufhebung der vierfachen Entartung des Grundzustandes. Ihre Wirkungen unterscheiden sich jeweils grundlegend für den Fall eines geladenen und ungeladenen Quantenpunktes. Sie werden im Folgenden kurz näher beschrieben.

⁶engl.: *hole*

2.2.1 Ungeladener Quantenpunkt

In Abwesenheit eines externen Magnetfeldes (d.h. $\mathcal{H}_{\text{magn}} = 0$) wirkt am ungeladenen QP nur die Austauschwechselwirkung zwischen Elektron und Loch, diese lässt sich zerlegen in einen isotropen und einen anisotropen Anteil. Der isotrope Anteil wirkt in jeder Kristallsymmetrie, deshalb auch bei der für die hier betrachteten Quantenpunkte maßgebenden D_{2d} Punktgruppe [25]. Sie sorgt für eine Aufhebung der Entartung zwischen hellen und dunklen ($|\pm 1\rangle$ bzw. $|\pm 2\rangle$) Exzitonzuständen [15]. Die energetische Aufspaltung beträgt in den hier behandelten Proben $\Delta_0 = 1.9$ meV [26]. Ist die Quantenpunkt-Symmetrie erniedrigt und dadurch kleiner als die Punktgruppe D_{2d} , z.B. durch unterschiedliche laterale Ausdehnung in x - und y -Richtung, besitzt die Austauschwechselwirkung zusätzlich einen anisotropen Anteil $\neq 0$. In der Basis der ungestörten Zustände des hellen Exzitons $|\pm 1\rangle$ lassen sich die neuen Eigenzustände schreiben als $(|+1\rangle \pm |-1\rangle)/\sqrt{2}$. Die entsprechenden optischen Übergänge sind linear polarisiert [15, 27]. In CdSe Quantenpunkten ist die energetische Aufspaltung aufgrund dieser anisotropen Wechselwirkung mit $\Delta_1 = 200$ μeV ca. eine Größenordnung kleiner als die isotrope Austauschwechselwirkung. Auch die dunklen Exzitonen spalten auf ($\Delta_2 \leq 20$ μeV [26]), jedoch liegt diese Energie meist unterhalb der spektroskopischen Auflösungsgrenze.

In einem externen Magnetfeld gilt $\mathcal{H}_{\text{magn}} \neq 0$ aus Gl.(2.3). Der paramagnetische Anteil sorgt für eine Aufspaltung gemäß dem Zeeman-Effekt. Je nach Orientierung des externen Magnetfeldes unterscheidet man Faraday- ($B \parallel \vec{z}$) und Voigt-Geometrie ($B \perp \vec{z}$). Eine ausführliche Behandlung der neuen Eigenenergien und -zustände unter Berücksichtigung der Kristallsymmetrie findet sich beispielsweise in [28]. Für die hier behandelten Quantenpunkte sind sowohl die Confinement-Energien als auch die Coulomb-Bindungsenergie zwischen Elektron und Loch groß gegen die Zyklotron-Energie $\hbar\omega_C$. Daher gibt es keine Landauaufspaltung und der entsprechende Anteil in $\mathcal{H}_{\text{magn}}$ kann als diamagnetische Verschiebung störungstheoretisch behandelt werden.

2.2.2 Quantenpunkt mit residentem Ladungsträger

Im Folgenden wird angenommen, dass der Quantenpunkt einfach negativ geladen ist, was durch die Lokalisation eines Elektrons aus der Umgebung im QP erfolgen kann. Die Besetzung des Quantenpunkts mit Elektron-Loch-Paaren durch Absorption von Photonen ist in Abb. 2.1 schematisch dargestellt, ein geladener QP beinhaltet also immer eine ungerade Gesamtzahl von Ladungsträgern. Ein Komplex aus zwei Elektronen und einem Loch wird Tri-

on genannt. Ist der geladene QP mit mehr als drei Ladungsträgern besetzt, bilden sich geladene Bi- bzw. Multiexzitonen-Zustände. Je nach Tiefe und Größe des QP können diese Komplexe gebunden oder Streuzustände sein. Im Folgenden beschränkt sich die Diskussion auf das einfach negativ geladene, gebundene Trion.

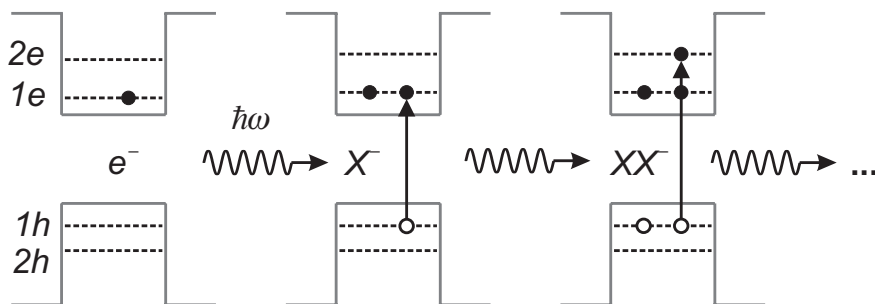


Abbildung 2.1: Sukzessive Absorption von Photonen in einem Quantenpunkt mit residentem Elektron, es bilden sich geladene Multiexzitonen-Zustände, dargestellt ist jeweils der Grundzustand. Links: Residentes Elektron, Mitte: negativ geladenes Trion, Rechts: negativ geladenes Biexziton. Offene Kreise: Löcher, gefüllte Kreise: Elektronen. Wegen des Pauli-Prinzips werden sukzessiv höhere Schalen besetzt.

Im Grundzustand des Trions besetzen zwei Elektronen und ein Loch die jeweils niedrigste Einteilchenschale. Der Komplex kann mit folgender, an der Atomphysik angelehnten Nomenklatur charakterisiert werden, die im Folgenden noch häufiger verwendet wird: $1e^21h^1$. Hierbei bedeutet np^N , dass der n -te Einteilchenzustand vom Elektron ($p = e$) bzw. Loch ($p = h$) mit N Teilchen besetzt ist. Die beiden Elektronen haben antiparallelen Spin (Pauli-Prinzip) und bilden einen Singulett-Zustand.

Die Spinstruktur des Trions unterscheidet sich grundlegend von der des Exzitons, da es aus einer ungeraden Anzahl von Fermionen aufgebaut ist. Hier greift das Kramers-Theorem, wonach Zustände, die sich bezüglich einer Zeitumkehr-Transformation symmetrisch verhalten, entartet sind [29]. Ohne externes Magnetfeld bleibt diese Entartung erhalten, unabhängig von der Symmetrie des Quantenpunkts.

Die Austauschenergien am Trion lassen sich hierarchisch ordnen. Die Wechselwirkung zwischen den zwei Elektronen ist ca. eine Größenordnung stärker als die Elektron-Loch Wechselwirkung. Beide können wiederum in einen isotropen und einen anisotropen Anteil aufgegliedert werden. Im Verbund mit dem Loch bleibt der Singulett-Charakter der beiden Elektronen deshalb erhalten, da die Austauschwechselwirkung zweier Teilchen aus demselben Band ($e-e$) stärker ist als zwischen Teilchen unterschiedlicher Bänder

($e - h$). Der Gesamtdrehimpuls F des Trions ist halbzahlige. Der Grundzustand umfasst zwei Zustände, die sich gemäß $\vec{F} = \vec{j}_{hh} + \vec{S}_e$ aus den Drehimpulsen vom schweren Loch $|\vec{j}_{hh}| = 3/2$ und dem Gesamtdrehimpuls der Elektronen $\vec{S}_e = \vec{s}_1 + \vec{s}_2$ zusammensetzen. Für den Gesamtspin der Elektronen gilt im Singulett-Grundzustand $S_e = 0$ und $S_{e,z} = 0$. Im klassischen Bild besetzen beide Elektronen dieselbe Energieschale mit antiparallelem Spin. Für das Trion gilt folglich: $F_z = \pm 3/2$. Da der Gesamtspin der beiden Elektronen im Grundzustand verschwindet, gibt es keine Austauschwechselwirkung zwischen Elektron und Loch, die einzelnen Beträge der beiden Elektronen kompensieren sich. Beim Zerfall des Trions rekombiniert ein Elektron mit einem Loch und es verbleibt ein Elektron mit $s_e = 1/2$ im QP. Ohne externes Magnetfeld sind die Übergänge mit $\Delta F_z = \pm 1$ (optisch erlaubt) und $\Delta F_z = \pm 2$ (optisch verboten) jeweils Kramers-entartet. Durch das Fehlen der $e - h$ Austauschwechselwirkung sind dazu die Übergänge mit $\Delta F_z = \pm 1, \pm 2$ bei $B = 0$ ebenfalls entartet.

Der erste angeregte Elektronenzustand bezeichnet ein „heißes“ oder angeregtes Trion, da die Ladungsträger nicht alle im Grundzustand sind. Hierbei besetzt eines der beiden Elektronen die nächsthöhere Schale: $1e^1 2e^1 1h^1$. Je nach Gesamtspin S_e der beiden Elektronen kann der Zustand unterteilt werden in ein Triplett ($S_e = 1$) und ein Singulett ($S_e = 0$). Da die beiden Elektronen unterschiedliche Schalen besetzen, verschwinden die Austauschwechselwirkungen nicht. Dieser Zustand wird in Kap. 4.5 noch genauer behandelt, im Folgenden beschränkt sich die Diskussion auf den Grundzustand.

Trionen im Magnetfeld

In einem externen Magnetfeld $\vec{B} = (B_x, B_y, B_z)$ wird die vierfache Entartung der Übergänge vom Trion-Grundzustand aufgehoben: Es spaltet sowohl der Trionzustand mit $F_z = j_{hh,z} = \pm 3/2$ als auch der verbleibende Elektronenzustand mit $s_{e,z} = \pm 1/2$ auf. Vom Hamiltonoperator \mathcal{H}_{magn} wird nur der paramagnetische Anteil \mathcal{H}_{Zeeman} betrachtet, dieser besitzt allgemein folgende Form [25]:

$$\mathcal{H}_{Zeeman}^{hh} = \mu_B \sum_{i=x,y,z} [\varkappa_i j_{h,i} B_i + q j_{h,i}^3 B_i] , \quad (2.4)$$

$$\mathcal{H}_{Zeeman}^e = \frac{1}{2} \mu_B \sum_{i=x,y,z} [g_{e,i} \sigma_i B_i] . \quad (2.5)$$

Hierbei ist μ_B das Bohrsche Magneton, σ_i sind die Pauli-Spinmatrizen, $g_{e,i}$ die Komponenten des Elektron g -Faktors, und \varkappa_i und q sind Zeeman-Parameter für das Valenzband im Luttinger-Hamiltonian [25]. Die diamagnetische Ver-

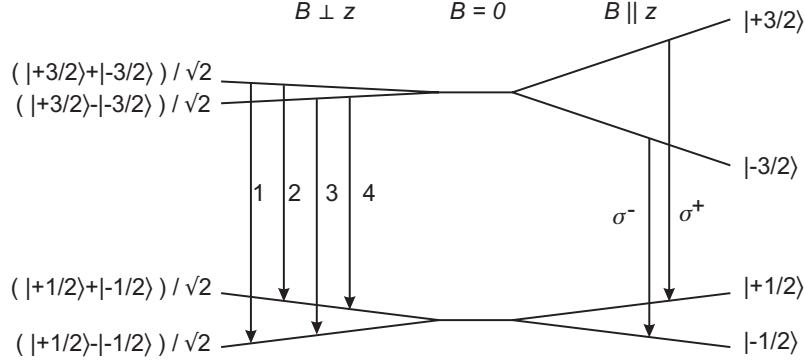


Abbildung 2.2: Aufspaltung des Schwerloch-Trion Grundzustandes im externen Magnetfeld, eine Kopplung der schweren mit leichten Löchern ist nicht berücksichtigt. Links Voigt- rechts Faraday-Geometrie. Optisch erlaubte Übergänge des Zerfalls zum verbleibenden Elektron sind eingetragen.

schiebung, die proportional zu B^2 erfolgt, wird in dieser Einführung nicht berücksichtigt.

In Faradaygeometrie mit **longitudinalem** $\vec{B} = (0, 0, B_z)$ parallel zur Quantisierungsachse z vereinfachen sich (2.4) und (2.5) und können in der Basis $|\pm 3/2\rangle$ und $|\pm 1/2\rangle$ jeweils geschrieben werden als

$$\mathcal{H}_{Zeeman}^{upnu, long} = \frac{1}{2} \mu_B B_z g_{\nu, z} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (2.6)$$

Hierbei ist ν wie oben der Teilchenindex für das Elektron oder das Schwerloch. Der g -Faktor des Lochs ist wegen $j_{h,z}^3 = \frac{3}{4} j_{h,z}$ definiert als $g_{h,z} = 3 \left(\kappa + \frac{9}{4} q \right)$. Es ergeben sich die bekannten Eigenzustände $|\pm 3/2\rangle$ für das Trion und $|\pm 1/2\rangle$ für das verbleibende Elektron. Nur Übergänge mit $\Delta F_z = \pm 1$ sind optisch erlaubt, für den Zerfall $|\pm 3/2\rangle \rightarrow \sigma^\pm + |\pm 1/2\rangle$ ergibt sich deshalb die Energieaufspaltung

$$\Delta E_{Zeeman} = \mu_B (g_{hh,z} - g_{e,z}) B_z. \quad (2.7)$$

Dabei wird der aufgrund der Spinkonfiguration von Elektron und Loch der trionische g -Faktor wie folgt definiert:

$$g_{X^-, z} = g_{hh,z} - g_{e,z}. \quad (2.8)$$

Wie in Abb. 2.2 zu sehen, gibt es in Faradaygeometrie zwei optisch erlaubte Übergänge, die anderen zwei Übergänge $|\pm 3/2\rangle \rightarrow |\mp 1/2\rangle$ bleiben wegen $\Delta F_z = \pm 2$ optisch verboten.

Anders ist die Situation hingegen in einem **transversalen** Magnetfeld (Voigt-Geometrie), hier sei $\vec{B} = (B_x, 0, 0)$. Wegen $j_{h,x} = 0$ entfällt in (2.4) der \varkappa -Term. $j_{h,x}^3$ besitzt nur Nicht-Diagonal Elemente, deshalb lässt sich analog zu (2.6) schreiben

$$\mathcal{H}_{Zeeman}^{\gamma, trans} = \frac{1}{2} \mu_B B_x g_{v,x} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ -1 & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.9)$$

Das Magnetfeld bricht die Symmetrie in der xy -Ebene und führt dazu, dass $j_{h,z}$ und $s_{e,z}$ keine guten Quantenzahlen mehr sind. Die neuen Eigenzustände setzen sich zu $(|+3/2\rangle \pm |-3/2\rangle)/\sqrt{2}$ und $(|-1/2\rangle \pm |1/2\rangle)/\sqrt{2}$ für das Trion bzw. das Elektron zusammen⁷. Demnach koppeln helle und dunkle Trionenübergänge und es gibt vier mögliche Energiedifferenzen, diese sind in Abb. 2.2 eingetragen:

$$\begin{aligned} \Delta E_{1,2} &= \mu_B (g_{h,x} \pm g_{e,x}) B_x, \\ \Delta E_{3,4} &= \mu_B (-g_{h,x} \pm g_{e,x}) B_x. \end{aligned} \quad (2.10)$$

Aus diesen Beziehungen kann man folgern, dass eine Aufspaltung in vier unterschiedliche Linien nur bei einem endlichen Wert $g_{h,x} \neq 0$ erfolgt (siehe Kap. 4.2). Die Kopplung über $j_{h,x}^3$ ist relativistisch klein ($q \ll \varkappa$) und trägt nur zum kleinen Teil zu $g_{h,x}$ bei. Weitaus größer ist der Anteil, der durch die Kopplung von schweren und leichten Löchern verursacht wird. Phänomenologisch sind die beiden Effekte z.B. im rotierenden Magnetfeld zu unterscheiden [30].

2.3 Verdünnte magnetische Halbleiter

In verdünnten magnetischen II-VI Halbleitern wird im Zinkblende-Gitter (siehe Kap. 3.1.1) ein Teil der Kationenplätze durch Ionen eines Nebengruppenmetalls mit unvollständig gefüllter 3d-Schale besetzt (z.B. Cr, Mn, Fe). Dadurch entstehen neben elektronischen und magnetischen auch neue optische Eigenschaften. Für einen Überblick siehe [31]. Im Falle der hier untersuchten Proben erfolgt eine isoelektrische Substitution eines Teils der Cd^{2+} - durch Mn^{2+} - Ionen, was keine zusätzliche Dotierung hervorruft. Ein Manganatom besitzt eine halbgefüllte 3d-Schale, gemäß der Hund'schen Regeln ist es ein ${}^6S_{5/2}$ Sextett. Da im Grundzustand der Bahndrehimpuls $L_{\text{Mn}} = 0$ ist, liegt dementsprechend ein reiner Spin-Paramagnetismus mit $J_{\text{Mn}} = L_{\text{Mn}} + S_{\text{Mn}} = \frac{5}{2}$ vor. Der g -Faktor ist $g_{\text{Mn}} = 2$.

⁷Allgemein besteht zwischen den beiden Basiszuständen eine Phase, diese wird hier vernachlässigt

Das Spinensemble von N Mn-Ionen koppelt an ein externes Magnetfeld \vec{B} . Wenn man zunächst die Mn-Ionen als isoliert, d.h. wechselwirkungsfrei betrachtet, erfolgt die Kopplung gemäß dem bekannten Hamiltonoperator [32]

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman}} = g_{\text{Mn}} \mu_{\text{B}} \sum_{i=1}^N \vec{S}_i \cdot \vec{B}, \quad (2.11)$$

wobei S_i den Spin des i -ten Mn-Ions beschreibt (der Index Mn wird im Folgenden weggelassen). Die Magnetisierung M des Spinensembles berechnet sich [32] aus der freien Energie F des Systems zu

$$M = -\frac{N}{V} \frac{\partial F}{\partial B} = g_{\text{Mn}} \mu_{\text{B}} x N_0 \langle s_z \rangle. \quad (2.12)$$

Hierbei wird o. B. d. A. mit $\vec{B} = (0, 0, B)$ das Magnetfeld parallel zur z -Achse gewählt. In dem betrachteten Probenvolumen V bezeichnet x die stöchiometrische Mn-Konzentration, N_0 ist das inverse Volumen der Einheitszelle. Die mittlere Spinprojektion pro Mn-Ion $\langle s_z \rangle$ bei endlicher Spintemperatur T_S berechnet sich quantenstatistisch und ist gegeben durch

$$\langle s_z \rangle = -S B_S(\xi), \quad \xi = \frac{S g_{\text{Mn}} \mu_{\text{B}} B}{k_{\text{B}} T_S} \quad (2.13)$$

mit der Brillouinfunktion ($S = \frac{5}{2}$)

$$B_S(\xi) = \frac{2S+1}{2S} \coth\left(\frac{2S+1}{2S}\xi\right) - \frac{1}{2S} \coth\left(\frac{1}{2S}\xi\right). \quad (2.14)$$

Im Argument ξ der Brillouinfunktion findet sich die Abhängigkeit sowohl vom Magnetfeld als auch von der Spintemperatur des Mn-Ensembles. Für kleine Argumente ξ gilt für die Magnetisierung $M \propto B$, für große Argumente ξ sättigt die Magnetisierung, weil quasi alle Mn-Spins ausgerichtet sind.

2.3.1 d-d Austauschwechselwirkung

Die Annahme, dass die Mn-Ionen untereinander wechselwirkungsfrei in das Kation-Untergitter eingebaut werden, gilt streng genommen nur für eine unendlich verdünnte Konzentration. Bei endlicher Konzentration x kommt es aufgrund des endlichen Abstandes zu Wechselwirkungen zwischen den Mn-Ionen und damit zur Ausbildung von magnetischen Phasen. Für nicht zu hohe Konzentrationen $x \lesssim 0.5$ und nicht zu tiefe Temperaturen $T' > 2\text{K}$ dominieren kurzreichweitige Wechselwirkungen [31]. In Abhängigkeit von der Temperatur unterscheidet man eine paramagnetische ($T > T_g$) und eine Spinglas-Phase ($T < T_g$). Bei den hier behandelten Mangankonzentrationen $x \leq 0.07$

ist die kritische Temperatur des Phasenübergangs $T_g < 1$ K [33], und damit kleiner als die in dieser Arbeit experimentell realisierten Temperaturen, so dass nur die paramagnetische Phase betrachtet zu werden braucht. Die Wechselwirkung zweier Mn-Ionen kann auf Gitterplätze zwischen nächsten Nachbarn beschränkt werden, da diese den größten Anteil am Gesamtaustausch liefern [34, 35]. Unter den verschiedenen Austauschmechanismen ist der so genannte Superaustausch über das gemeinsame Se-Anion wiederum weit stärker als andere Prozesse wie z. B. der direkte Austausch [36]. In guter Näherung kann diese Wechselwirkung phänomenologisch durch einen Heisenberg-Hamiltonian beschrieben werden:

$$\mathcal{H}_{\text{d-d}} = - \sum_{i,j} J(\vec{R}_{ij}) \vec{S}_i \vec{S}_j \approx -J_1 \sum_{i,j} \vec{S}_i \vec{S}_j. \quad (2.15)$$

Der Austauschparameter J_1 beschreibt dabei die Stärke der isotropen Kopplung zwischen zwei benachbarten Ionen i und j mit den Spins \vec{S}_i und \vec{S}_j und dem Abstandsvektor \vec{R}_{ij} . Durch das hier negative Vorzeichen von J_1 führt dies zu einer antiferromagnetischen Kopplung von benachbarten Mn-Ionen. Erst bei hohen äußeren Feldstärken $\mu_B B > 2J_1$ können die gekoppelten Spins ausgerichtet werden [37]. Bei kleineren und allen in dieser Arbeit relevanten Feldstärken (i. A. $B < 10$ T) führt dies zu einer Reduzierung des Anteils ungekoppelter Mn-Ionen, die sowohl paramagnetisches Verhalten zeigen als auch zur Kopplung mit freien Ladungsträgern zur Verfügung stehen (siehe nächster Abschnitt). In Gl. (2.12) wird deshalb eine effektive Mangankonzentration $x_{\text{eff}} = xr(x)$ mit $0 < r(x) < 1$ für $0 < x < 1$ als phänomenologischer Parameter eingeführt, wobei $r(x)$ einen Reduktionsfaktor darstellt. Verallgemeinert tragen auch Ionenpaare in größerem Abstand und Cluster aus mehr als zwei Ionen wegen ihrer Kopplung nicht zum paramagnetischen Verhalten (siehe voriger Abschnitt) bei. Die Einführung einer effektiven Temperatur, die um den phänomenologischen Parameter T_0 größer ist als die Spintemperatur, trägt all diesen Kopplungen ebenfalls Rechnung. Dadurch ändert sich die Magnetisierung aus Gl. (2.12) zu:

$$M = g_{\text{Mn}} \mu_B x r(x) N_0 S B_{5/2} \left(\frac{S g_{\text{Mn}} \mu_B B}{k_B (T_S + T_0)} \right). \quad (2.16)$$

Die Größe von T_0 hängt dabei von der Mn-Konzentration x ab, die genaue Form der Reduktionsfunktion $r(x)$ muss die Geometrie der betrachteten Struktur berücksichtigen. In semimagnetischen Volumenkristallen mit Zinkblende-Struktur gilt $r_{\text{bulk}} = (1 - x)^{12}$, folgend aus der Koordinationszahl des Kation-Untergitters. Daraus errechnet sich für Magnetfelder $B < 10$ T eine maximale Magnetisierung bei einer Mn-Konzentration $x_{\text{max}} \approx 0.077$.

Eine weitere Erhöhung der Magnetisierung kann nur durch Ausrichten der Mn-Paare bei höheren Feldern erfolgen [37].

2.3.2 (s,p)-d Austauschwechselwirkung

Für die magneto-optischen Eigenschaften semimagnetischer Halbleiter sind vor allem die Wechselwirkungen optisch angeregter Ladungsträger mit den Mn-Ionen ausschlaggebend. Die (s,p)-d Wechselwirkung beschreibt den Austausch zwischen den d-Elektronen der ungepaarten, paramagnetischen Mn-Ionen und Elektronen im s-artigen Leitungsband bzw. Löchern im p-artigen Valenzband. Der Hamiltonoperator, der diese Austauschwechselwirkung beschreibt, hat folgende Form [31]:

$$\mathcal{H}_{(s,p)-d} = - \sum_i J^{(s,p)-d} \left(\vec{r}_{\mathbf{v}} - \vec{R}_i \right) \vec{S}_i \cdot \vec{s}_{\mathbf{v}}. \quad (2.17)$$

Hierbei sind $J^{(s,p)-d}$ die Austauschintegrale, $r_{\mathbf{v}}$ der Ort des Elektrons ($\mathbf{v} = e$) im Leitungsband bzw. des Lochs ($\mathbf{v} = h$) im Valenzband und \vec{R}_i die Orte der Mn-Ionen mit dem Spin \vec{S}_i . Mit $\vec{s}_{\mathbf{v}}$ wird der Spin des betrachteten Ladungsträgers bezeichnet. Da sich die Einhüllende Funktion optisch angeregter Ladungsträger über viele Elementarzellen erstreckt, kann in vielen Fällen die Summation in (2.17) über das gesamte Kationgitter ausgeführt werden (Molekularfeldnäherung, [32]) und die Berücksichtigung der Mn-Spins erfolgt über einen Mittelwert:

$$\mathcal{H}_{(s,p)-d} = -s_{\mathbf{v},z} \langle s_z \rangle \sum_i J^{(s,p)-d} \left(\vec{r} - \vec{R}_i \right). \quad (2.18)$$

Bei einem angelegten Magnetfeld in z -Richtung ist der Mittelwert $\langle s_z \rangle$ gleich dem mittleren Spin der zum Paramagnetismus beitragenden, ungekoppelten Mn-Ionen pro Kationplatz. Dieser ist gegeben durch Gl. (2.13) und lässt sich unter Berücksichtigung der d-d Kopplungen (siehe voriger Abschnitt) schreiben als

$$\langle s_z \rangle = \frac{1}{N_0} \frac{M(x, B, T)}{g_{\text{Mn}} \mu_B} = x r(x) S B_{5/2} \left(\frac{S g_{\text{Mn}} \mu_B B}{k_B (T + T_0)} \right). \quad (2.19)$$

Die phänomenologischen Parameter $r(x)$ und T_0 wurden im vorigen Abschnitt eingeführt. Eine störungstheoretische Berechnung der Erwartungswerte des Hamiltonian liefert die Austauschenergien ΔE für ein Elektron im Leitungs- und ein schweres Loch im Valenzband:

$$\begin{aligned} \Delta E^{\text{LB}}(s_{e,z}) &= N_0 \alpha \langle s_z \rangle s_{e,z}, & s_{e,z} &= \pm \frac{1}{2}, \\ \Delta E^{\text{VB}}(j_{hh,z}) &= \frac{1}{3} N_0 \beta \langle s_z \rangle j_{hh,z}, & j_{hh,z} &= \pm \frac{3}{2}. \end{aligned} \quad (2.20)$$

Die Austauschkonstanten α und β berechnen sich aus der Integration mit den Kohn-Luttinger Basiszuständen für das Valenz- bzw. das Leitungsband am Γ -Punkt:

$$\alpha = \langle s_e | J^{s-d} | s_e \rangle, \quad \beta = \langle j_{hh} | J^{p-d} | j_{hh} \rangle \quad (2.21)$$

und sind für viele Systeme verdünnter magnetischer Halbleiter bekannt [38].

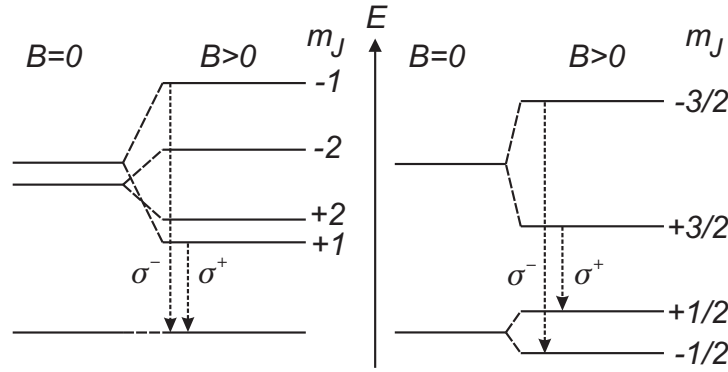


Abbildung 2.3: Schema der (s,p)-d Austauschwechselwirkung im externen Magnetfeld in Faraday-Geometrie (nur schwere Löcher). Links: Aufspaltung der Exzitonenergie im Grundzustand. Rechts: Aufspaltung des Trion-Grundzustandes und Endzustandes (Elektron). Die Pfeile kennzeichnen jeweils optisch erlaubte ($\Delta J_z = \pm 1$) Übergänge und deren Polarisation.

Die Ausrichtung der Mn-Spins wird also durch die Austauschenergie auf die optisch erzeugten Ladungsträger abgebildet [39]. Es erfolgt eine spinabhängige Energieverschiebung der Bänder, gemäß Gl. (2.20) ergibt sich für optisch erlaubte Bandübergänge mit $\Delta J_z = +1$ hierfür $\Delta E^{\text{LB}}(-\frac{1}{2}) - \Delta E^{\text{VB}}(-\frac{3}{2})$; bei $\Delta J_z = -1$ entsprechend $\Delta E^{\text{LB}}(+\frac{1}{2}) - \Delta E^{\text{VB}}(+\frac{3}{2})$.

Die optischen Bandübergänge sind in Abb. 2.3 im Teilchenbild für Exzitonen und Trionen eingezeichnet. Es werden wieder nur die hier optisch relevanten schweren Löcher mit $j_{hh,z} = \pm 3/2$ berücksichtigt. Da bei den hier betrachteten Systemen gilt: $|\alpha| < |\beta|$, ist die Energieaufspaltung heller Exzitonen bzw. Trionen stärker als die dunkler Exzitonen bzw. Trionen, d.h. es gilt: $|\alpha - \beta| > |\alpha + \beta|$.

Die Gesamtenergie der Bandverschiebung $(\Delta E)_{\text{ges}}$ enthält zusätzlich zu dem Term in (2.20) auch den normalen Zeeman-Effekt. Analog dem dort zugeordneten g -Faktor $g_{X,z}$ lässt sich ein effektiver g -Faktor definieren:

$$g_{\text{eff}} = \frac{(\Delta E)_{\text{ges}}}{\mu_B B} = g_{X,z} - \frac{N_0 (\alpha - \beta) \langle s_z \rangle}{2\mu_B B}. \quad (2.22)$$

Die Aufspaltung der Bänder aufgrund der (s,p)-d Wechselwirkung kann bei kleinen Feldstärken zwei Größenordnungen über dem normalen Zeeman-Effekt liegen [40], man spricht vom Riesen-Zeeman-Effekt. Der erste Term auf der rechten Seite von (2.22) wird deshalb im Allgemeinen vernachlässigt. Ebenso können im Magnetfeld in den meisten Fällen alle Feinstruktur-Terme, die an nichtmagnetischen Strukturen diskutiert werden, vernachlässigt werden, da der Riesen-Zeeman-Effekt eine um ein bis zwei Größenordnungen stärkere Verschiebung bewirkt.

Kapitel 3

Experimentelle Grundlagen

3.1 Die Proben

Um einzelne Quantenpunkte reproduzierbar messen zu können, ist eine genaue Kenntnis der Proben, sowie die Auswahl geeigneter experimenteller Techniken nötig. Beide Thematiken werden in diesem Kapitel vorgestellt.

3.1.1 II-VI Verbindungshalbleiter

Die untersuchten Proben werden mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) in der Arbeitsgruppe Photonik hergestellt. Das MBE-Verfahren erlaubt es auf die Atomlage genaues Wachstum von Kristallstrukturen.

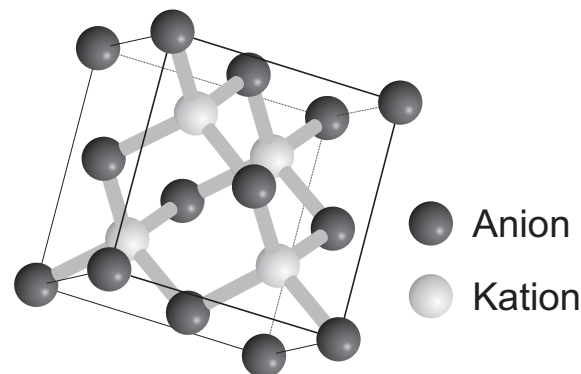


Abbildung 3.1: Kristallstruktur von Zinkblende: die Atome einer Atomsorte bilden jeweils ein kubisch-flächenzentriertes Gitter. Beide Gitter sind um $1/4$ der Raumdiagonale gegeneinander verschoben.

Einige Halbleiter, die aus Verbindungen von Elementen der 2. Hauptgruppe des Periodensystems der Elemente mit der 6. Hauptgruppe gebildet

werden, kristallisieren in der Zinkblendestruktur (siehe Abb. 3.1). Diese wird durch zwei kubisch-flächenzentrierte (fcc) Untergitter aufgebaut, die gegeneinander um $1/4$ der Raumdiagonalen verschoben sind. Jedes Teilgitter wird nur von Atomen einer Sorte besetzt, so dass jedes Atom tetraedrisch von vier Atomen der anderen Sorte umgeben ist. Es gibt zwölf nächste Nachbarn derselben Atomsorte. Die stärkere Polarisierung der Bindung im Vergleich zu III-V Halbleitern führt in der Spektroskopie zu einer Reihe von Vorteilen. Zum einen führt die stärkere Coulomb-Wechselwirkung dazu, dass die Exziton-Bindungsenergie eine Größenordnung höher liegt als in III-V Halbleitern. Z.B. beträgt diese 4.2 meV in GaAs und 19 meV in ZnSe Volumenkristallen [24]. Gleiches gilt für Multiexziton-Komplexe, z.B. beträgt die Bindungsenergie von Biexzitonen in CdSe Quantenpunkten mehr als 20 meV [41, 18]. Zum anderen ist die Feinstruktur aufgrund der stärkeren Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung (siehe Kap.2.2) leichter durch optische Spektroskopie zugänglich [42, 15, 43]. Die höhere Polarität der Bindungen im Kristall führt gleichzeitig zu einer stärkeren Kopplung freier Ladungsträger mit LO-Phononen.

Mit Hilfe eines RHEED¹ kann der Wachstumsprozess und die Perfektion der Schichten in der MBE-Kammer kontrolliert werden. Beim Wachstum von Lagen unterschiedlicher Atomsorten kommt es aufgrund der unterschiedlichen Größen der Atome bzw. der Bindungslängen zwischen den Atomen zu einer Gitterfehlانpassung zwischen den Schichten und infolge dessen zu einer Verspannung der wachsenden Schicht. Das hat u.a. bedeutende Auswirkungen auf die Bandstruktur der Heterostruktur [44].

Die Bildung von Quantenpunkten erfolgt durch einen thermisch aktivierten Übergang einer drei Monolagen dicken Schicht aus CdSe bzw. (Cd,Mn)Se [45]. Durch Reorganisation der Oberfläche von einer 2D- zu einer 3D-Morphologie wird ein Teil der Verspannungen abgebaut. Im Falle von III-V Halbleiter-Heterostrukturen erfolgt dieser Übergang spontan und führt zur Bildung von sogenannten Stranski-Krastanov Quantenpunkten. In den hier untersuchten II-VI Systemen haben die QP dieselbe Morphologie. Bei dem Wachstum nichtmagnetischer Quantenpunkte werden als Barrierenmaterial die Elemente Zn und Se verwendet, für die QP Schicht wird CdSe verwendet. Auf die Besonderheiten beim zusätzlichen Einbau magnetischer Mn-Ionen wird im Unterkapitel 3.1.3 kurz eingegangen. Eine Eigenheit des Barrierenmaterials ZnSe ist seine leichte intrinsische n-Dotierung [46]. ZnSe ist ein Halbleiter mit direkter Bandlücke. Deren Energie von 2.82 eV sowie die Bandlücke von CdSe von 1.77 eV geben den Spektralbereich für die Untersuchungen vor, die Grundzustände der Quantenpunkte haben bei tiefen

¹engl.: reflection of high energy electron diffraction

Temperaturen eine Energie von 2.42 eV.

3.1.2 Nichtmagnetische Quantenpunkte

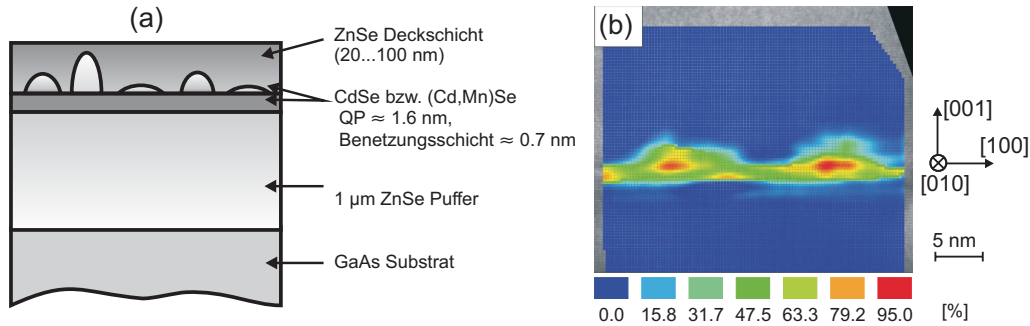


Abbildung 3.2: a) Schematischer Querschnitt durch die verwendeten Quantenpunktproben. Die Höhe der QP sowie deren Variation ist stark übertrieben dargestellt. b) Cd-Konzentration in einer QP-Probe im Querschnitt, die aus HRTEM-Bildern nach der CELFA-Methode gewonnen wird [47].

Der Aufbau inklusive der typischen Schichtdicken der hier verwendeten Proben ist in Abb. 3.2 a) im Querschnitt skizziert. Auf ein GaAs Substrat mit einer typischen Dicke von 0.5 mm wird eine 1 μ m dicke ZnSe-Pufferschicht gewachsen, in der Verspannungen aufgrund der Gitterfehlانpassung zwischen GaAs und ZnSe abgebaut werden. Zusammen mit der Deckschicht erfolgt dadurch eine Einbettung der QP-Schicht in eine ZnSe-Matrix. Die Darstellung der QP-Größe ist in Abb. 3.2 a) stark übertrieben dargestellt und soll die inhomogene Verteilung illustrieren. Die Variation der Höhe über das QP-Ensemble beträgt $\Delta h/h \approx 0.1$. Typisch für die QP ist ein Verhältnis von Höhe (ohne Restschicht) zu Durchmesser von 1:3. HRTEM-Untersuchungen² an nichtmagnetischen CdSe-Proben zeigen wie in Abb. 3.2 b) dargestellt, dass die Quantenpunkte praktisch aus einem reinen CdSe-Kern bestehen [47]. Die Auswertung der Bilder erfolgt mittels der CELFA-Methode³ an der Uni Karlsruhe [48]. Aus der Analyse kann geschlossen werden, dass beim thermisch aktivierten Prozess nur geringe Interdiffusion auftritt. Zusammen mit dem hohen Cd-Gehalt zeichnet dies die Proben gegenüber denen anderer MBE-Gruppen [49, 50] aus.

Die reinen CdSe-Kerne haben eine laterale Ausdehnung von unter 10 nm und eine Höhe von 1.6 ± 0.1 nm. Deutlich ist in Abb. 3.2 die Benetzungs-

²engl. „high resolution transmission electron microscopy“

³engl. „composition evaluation by lattice fringe analysis“

schicht zu erkennen, auch Restschicht genannt. Die Pfeile neben der HRTEM-Aufnahme geben die kristallographische Probenorientierung vor, die bei allen Angaben und Experimenten maßgebend ist. Die Wachstumsrichtung z ist $[001]$, die xy -Ebene der Benetzungsschicht wird durch die Kristallachsen $[110]$ und $[1\bar{1}0]$ aufgespannt. Die laterale Dichte von $\rho_{QP} = 10^{11} \text{cm}^{-2}$ wird aus AFM-Messungen⁴ – vor dem Wachstum der Deckschicht und ohne zwischenzeitlichen Luftkontakt – bestimmt (siehe Abb. 3.3 links).

3.1.3 Probenstruktur verdünnter magnetischer Quantenpunkte

Um eine möglichst große Wechselwirkung zwischen semimagnetischen Ionen und den eingesperrten Ladungsträgern zu erreichen, werden in den hier verwendeten semimagnetischen Proben Mn-Ionen in die QP-Schicht eingebaut. Das Ersetzen eines Teils der Cd-Kationen durch Mn-Ionen beim Wachstum führt zu einer zufälligen Verteilung der Mn-Ionen innerhalb des Kation-Untergitters, und es entsteht eine CdMnSe-Schicht. Die Wachstumsmethodik der semimagnetischen QP basiert auf der oben genannten für CdSe-QP. Einzelheiten werden ausführlich in der Dissertation von P. Kratzert behandelt [51]. Neben den beabsichtigten Modifikationen der optischen Eigenschaften (siehe Kap. 5) entstehen auch strukturelle Veränderungen.

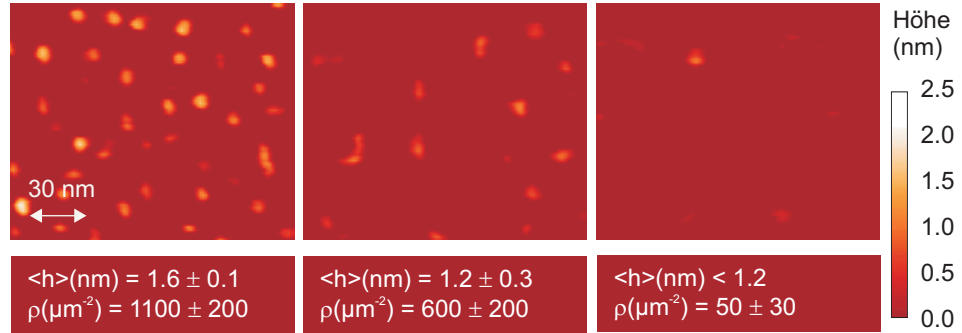


Abbildung 3.3: AFM-Aufnahmen unabgedeckter Quantenpunkte im Ultra-Hochvakuum mit unterschiedlichem Mn-Gehalt $x = 0$ (links), $x = 0.05$ (Mitte), $x = 0.1$ (rechts). Die laterale Dichte sowie die durchschnittliche QP-Größe nehmen von links nach rechts ab. (Quelle: [51])

Abb. 3.3 zeigt AFM-Aufnahmen, auf denen zu erkennen ist, dass durch den zunehmenden Einbau von Mn die laterale Quantenpunktdichte um mehr

⁴engl. „atomic force microscopy“

als eine Größenordnung sinkt. Zusätzlich kommt es zu einer leicht geringeren durchschnittlichen Höhe der QP. Darüber hinaus hat der Einbau von Mn keinen Einfluss auf die Probenstruktur, deshalb können viele Ergebnisse von Strukturuntersuchungen an CdSe-QP übernommen werden. Die Kontrolle des Mn-Gehalts beim Wachstum erfolgt über das Partialdruckverhältnis der beteiligten Effusionsöfen sowie deren Öffnungszeiten während der Wachstumsphase [51]. Eine Kalibrierung der Mn-Konzentration erfolgt aus dem Wachstum von separaten Proben mit ZnMnSe Epi-Schichten, deren Mn-Gehalt materialanalytisch bestimmt werden kann.

3.1.4 Zugang zu einzelnen Quantenpunkten und laterale Strukturierung

Das QP-Ensemble hat eine Größen- und eine Formverteilung. Zusätzlich hat auch die lokale Verspannungssituation Einfluss auf die Grundzustandsenergie eines QP [52, 53]. Das linke Inset der Abb. 3.4 zeigt die PL eines Ensemble von ca. 10^6 angeregten nichtmagnetischen CdSe Quantenpunkten und demonstriert die inhomogene Verbreiterung (Halbwertsbreite 70 meV), die aus dieser Verteilung resultiert. Bei der hier angeregten Anzahl von QPs (angeregte Fläche $\phi \approx 50\mu\text{m}$) überlappen sich die einzelnen Linien und lassen sich spektral nicht trennen. Um einzelne Quantenpunkte zu untersuchen, muss die Anzahl der angeregten bzw. detektierten Quantenpunkte reduziert werden. Bei Verwendung eines Mikroskopobjektivs zur optischen Anregung (Durchmesser des Anregungssspots $\phi \approx 1\mu\text{m}^2$) mit hoher numerischer Apertur kann die Anzahl der gleichzeitig angeregten und detektierten QP auf 1000 reduziert werden (μ -PL Technik). Damit ist Einzelpunkt-Spektroskopie möglich [54], aber unhandlich im Hinblick auf Reproduzierbarkeit und Langzeituntersuchungen. Um die Anzahl der selektierten Quantenpunkte weiter zu verringern, bieten sich entweder optische Nahfeldtechniken oder eine laterale Strukturierung der Proben an. Letztere hat den Vorteil einer hohen Reproduzierbarkeit, weil in Kombination mit einem μ -PL Messplatz individuelle QP auf unterscheidbaren Mesa reproduzierbar selektiert und untersucht werden können.

Bei der lateralen Strukturierung werden zwei unterschiedliche Prozess-Ansätze verfolgt. Zum einen kann die Probe mit einer Schattenmaske abgedeckt werden. Diese enthält Löcher definierter Größe, die ein reproduzierbares Messfenster ermöglichen. Vorteil ist eine zerstörungsfreie Behandlung der Probe, Nachteil ist das Auftreten von evaneszenten Feldern. Alternativ zu dieser Methode können zur Strukturierung sogenannte Mesastrukturen auf den fertigen Proben hergestellt werden. Dieser Weg wird bei den hier vor-

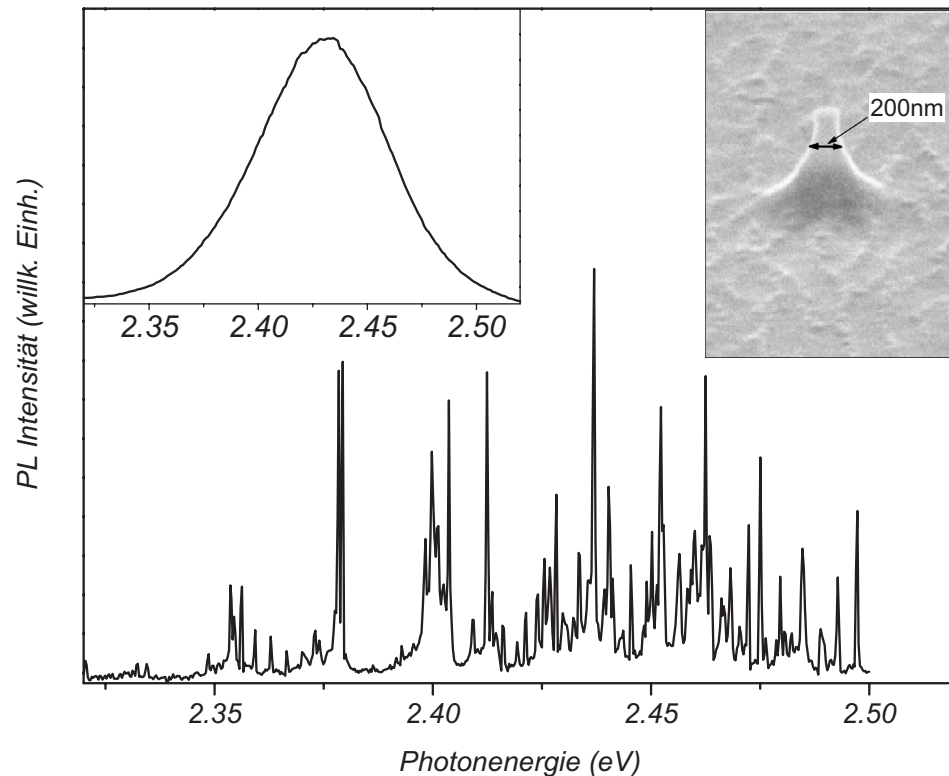


Abbildung 3.4: Oben links, PL eines Ensembles von CdSe-QP. Hauptbild: PL eines einzelnen geätzten Mesa, dieser ist oben rechts dargestellt (Aufnahme mit Elektronenmikroskop).

liegenden Proben angewandt. Nach Maskenerstellung mit Elektronenstrahl-Lithographie und anschließendem nasschemischen Ätzen der Oberfläche bleiben Strukturen wie in Abb. 3.4 oben rechts stehen. Vorteil ist die Reduzierung des angeregten Probenareals auf den Ort des Mesas, allerdings können durch den Ätz-Vorgang Oberflächenzustände entstehen und QP zerstört werden.

Diese sogenannten Mesa haben Durchmesser bis hinunter zu 80 nm [55] und eine Höhe von 200...300 nm, so dass in der Umgebung der Mesa der Halbleiter incl. Benetzungsschicht und QP entfernt ist. Auf den kleinsten hergestellten Mesa befinden sich noch 10...20 QP. Durch die reduzierte Anzahl der QP unterscheidet sich die PL einer Mesa von dem eines Ensembles, wie Abb. 3.4 für CdSe-QP zeigt. Es zeigen sich einzelne, spektral scharfe Linien, die gut voneinander zu trennen sind. Eine entsprechende Untersuchung einzelner Mn-haltiger QP an Mesastrukturen findet sich in Kapitel 5.3. Die Mesa sind zu Feldern gruppiert, um ihre Identifikation zu erleichtern. Der Abstand zweier Mesa voneinander ist einstellbar und beträgt ty-

pisch 20 μm . Bei einigen Feldern ist der Abstand so vergrößert, so dass auch ohne Verwendung eines Mikroskop-Objektivs einzelne Mesa angeregt werden können. Alle bisherigen Untersuchungen an den hier vorgestellten Proben zeigen, dass es Quantenpunkte gibt, die bei tiefen Temperaturen keine oder nur vernachlässigbar kleine Wechselwirkungen (Teilchenaustausch, Tunneleffekte, Coulomb-Korrelationen) zu benachbarten QP aufweisen. Somit können diese als voneinander *isolierte* Systeme betrachtet werden.

3.1.5 Zeitliche Stabilität der Photolumineszenz

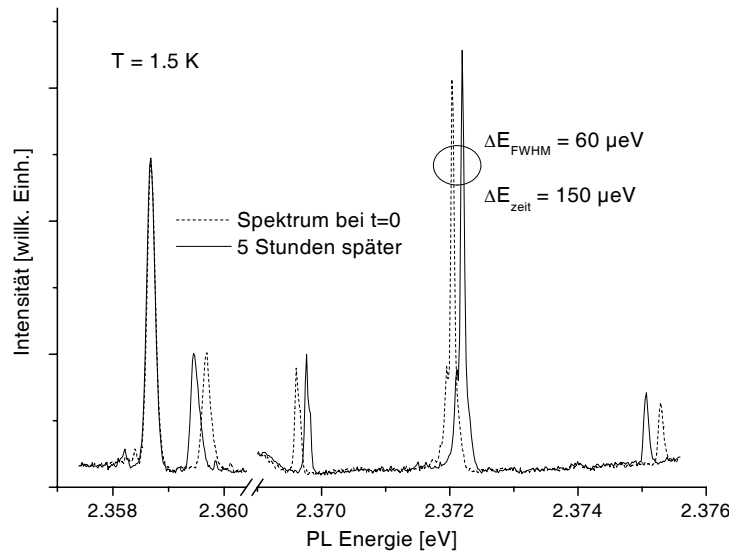


Abbildung 3.5: Zeitliche Stabilität einzelner CdSe Quantenpunkt-Emissionen bei $T=2\text{K}$.

Im Hinblick auf lange Integrationszeiten bei den meisten durchgeführten Experimenten an einzelnen, isolierten Quantenpunkten ist es wichtig, dass die Emission der einzelnen Linien zeitlich spektral stabil ist. Dadurch ist sichergestellt, dass im Laufe der Zeit keine inneren Veränderungen der elektronischen Struktur auftreten. In Abb. 3.5 ist die Photolumineszenz einiger CdSe-QP über fünf Stunden gemessen worden. Man kann erkennen, dass einige Linien keinerlei, andere dagegen energetische Verschiebungen in der Größenordnung von $100\text{ }\mu\text{eV}$ erfahren. Die genaue Ursache dieser Verschiebung ist unklar, sie wird auch an anderen Halbleiter-Quantenpunkten beobachtet [56, 57], oft in Verbindung mit einem sogenannten „Blinken“ der Lumineszenz [58]. Es wird mit einem mehr oder weniger reversiblen, zufälligen Umschalten zwischen metastabilen Zuständen erklärt. An den hier

untersuchten Proben zeigen viele QP selbst bei kontinuierlicher Anregung bis zur Sättigung (näheres hierzu siehe Kap. 4.4) keinerlei Verschiebung oder Blinken. Nur solche entsprechend stabile QP kommen für die Experimente in Frage.

3.2 Experimentelle Techniken

Die optischen Untersuchungsmethoden bestehen im Kern größtenteils aus laserangeregter polarisationsaufgelöster Spektroskopie. Dieser Abschnitt beschreibt die Messaufbauten sowie die experimentellen Besonderheiten, die zielgerichtet an die speziellen Messgegebenheiten angepasst sind.

Um eine thermische Verbreiterung der zu untersuchenden Resonanzen und Übergänge zu vermeiden, finden alle Untersuchungen bei tiefen Temperaturen statt, sofern nicht anders erwähnt, erfolgt eine Kühlung mit flüssigem Helium. Technisch wird dies durch Verwendung von vakuumisolierten Kryostaten realisiert.

3.2.1 Messungen im Magnetfeld

Messungen im Magnetfeld dienen hauptsächlich der Charakterisierung von einzelnen nichtmagnetischen Quantenpunkten (Kap. 4.2) sowie den Ensemble-Messungen an semimagnetischen (Cd,Mn)Se QP (Kap. 5.5).

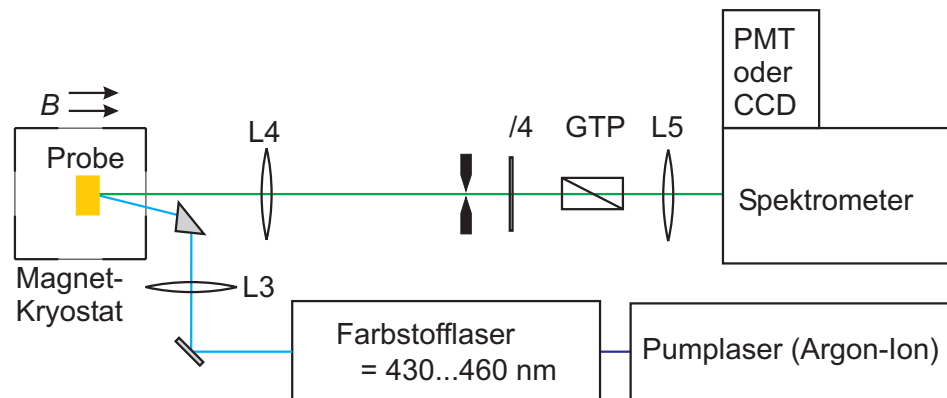


Abbildung 3.6: Aufbauschema für Messungen im Magnetfeld. Dargestellt ist ein Magnetfeld in Faraday Geometrie. Die Magnetfeldrichtung kann in der Bildebene gedreht werden, um z.B. Voigt Geometrie zu erzeugen. Abkürzungen s. Text.

Als Anregungsquelle dient ein Farbstofflaser, der von den UV-Linien eines Ar-Ion-Lasers gepumpt wird. Die Ausgangsleistung des Farbstofflasers

beträgt 150 mW, der Strahl ist linear polarisiert. Der Durchstimbereich des verwendeten Farbstoffs Stilben 3 liegt zwischen 420 nm und 470 nm. Damit bietet sich die Möglichkeit, die Quantenpunkte nichtresonant sowohl oberhalb als auch unterhalb der Energielücke der ZnSe-Barriere anzuregen und damit die Stärke der Absorption zu steuern. Speziell bei einzelnen Quantenpunkten ist es von Vorteil, durch niedrige Anregungsenergie die Untergrundlumineszenz, hervorgerufen durch tiefe Zentren im ZnSe [59], zu minimieren.

Wie aus Abb. 3.6 ersichtlich, wird der Anregungslaser auf die Probe fokussiert, der Durchmesser des Anregungsflecks beträgt minimal 80 μm . Die Probe befindet sich in einem Bad aus suprafluidem Helium ($T_B = 1.6 \text{ K}$) in einem Magnetkryostaten (Oxford Instruments). Aufgrund seiner hohen Wärmeleitfähigkeit gewährleistet suprafluides Helium eine optimale Probenkühlung. Das supraleitende Spulenpaar kann ein Magnetfeld bis zu 12 Tesla erzeugen und erlaubt durch seinen Aufbau Beobachtungen sowohl in Voigt- als auch in Faraday-Geometrie durch Drehung des Kryostaten. Das Lumineszenz-Signal wird durch die Linse L4 gebündelt und auf einer Lochblende abgebildet. Durch die starke Vergrößerung der Abbildung kann mit der Lochblende die Selektion des angeregten und des detektierten Bereichs durch Positionieren der Linsen L3 bzw. L4 kontrolliert werden. Die Kontrolle der zirkularen Polarisation erfolgt mit Hilfe einer $\lambda/4$ Verzögerungsplatte und eines Glan-Thomson Polarisators (GTP). Das erreichbare Lösungsverhältnis beträgt 100:1. Bei Bedarf kann ein zusätzlich eingebauter Kantenfilter Streulicht und unerwünschte Laserlumineszenz abschneiden. Die Photolumineszenz wird anschließend in einem Spektrometer zerlegt. Je nach gewünschter spektraler Auflösung kam hier ein Plangitterspektrograph der Firma Zeiss (lineare Dispersion 0.24 nm/mm) oder das Modell HR320 der Firma Jobin-Yvon (lineare Dispersion 3.6 nm/mm ⁵) zum Einsatz. Die Detektion erfolgt entweder durch einen mit flüssigem Stickstoff gekühlten Vielkanalanalysator (CCD-Matrix) oder mit Hilfe eines Photomultipliers (PMT). Bei zeitaufgelöster Lumineszenz-Messung der Spin-Gitter-Relaxation (siehe Kap. 5.5) wird speziell ein sogenannter „Multichannel Plate“ Photomultiplier zur Vermeidung von Hysterese-Effekten eingesetzt. Die Signale werden anschließend mit einem „Multiscaler“ der Firma Becker & Hickl, Modell MSA-200 (Zeitauflösung 5 ns) zeitaufgelöst detektiert. Letzterer wird dabei mit den Anregungspulsen des Lasers synchronisiert. Die weitere Auswertung erfolgt PC-unterstützt.

⁵beim hier verwendeten Gitter

Intensitätsmodulation

Bei der zeitaufgelösten PL-Detektion Mn-haltiger Heterostrukturen treten Effekte mit Zeitkonstanten im μs -Bereich auf. In diesem Abschnitt wird kurz die verwendete Vorrichtung zur Erzeugung von rechteckigen Laserpulsen erläutert.

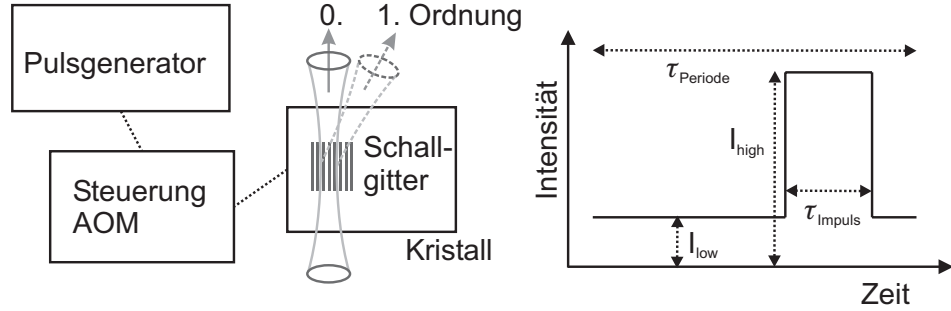


Abbildung 3.7: Intensitätsmodulation der Laseranregung durch einen akusto-optischen Modulator: Erzeugung von Rechtecks-Impulsen in der ersten Ordnung des gebeugten Laserstrahls.

Wie in Abb. 3.7 gezeigt, wird ein akusto-optischer Modulator (AOM) verwendet, der in den Anregungsstrahlengang eingebaut wird und die Intensität des Anregungslasers moduliert. Impulslänge τ_{Impuls} und Periodendauer τ_{Periode} können dabei ebenso den physikalischen Gegebenheiten angepasst werden wie die Intensitäten des Untergrunds (I_{low}) und das Intensitätsverhältnis von Impuls zu Untergrund $I_{\text{high}}/I_{\text{low}}$. Der Laser wird beim Durchgang durch ein laufendes Gitter aus Schallwellen (300 MHz) im AOM-Kristall gebeugt (Brillouin-Streuung). Die Zeitdauern der Modulation im abgelenkten Strahl werden über einen externen Pulsgenerator eingestellt, die Intensitäten werden über die Stärke der induzierten akustischen Wellen kontrolliert. Es können bis zu 50% der Gesamtintensität in die erste Ordnung des gebeugten Strahl transferiert werden. Die An- und Abstiegszeiten des modulierten Lichtstrahls sind durch die Schallgeschwindigkeit und die Tailenbreite des Strahls im Kristall ($\approx 50 \mu\text{m}$) zu unter 10 ns gegeben. Dieser Wert gibt die Zeitgenauigkeit des Experimentes vor.

3.2.2 Mikrophotolumineszenz-Messplatz zur Spektroskopie einzelner Quantenpunkte

Wichtig bei der Spektroskopie einzelner Quantenpunkte ist eine maximale Ausbeute des aufgesammelten PL-Signals sowie eine örtliche Auflösung

des Messaufbaus im μm Bereich. Deshalb wird ein Mikroskop-Objektiv mit großer Apertur (numerische Apertur 0.46) verwendet, wodurch mehr PL aufgesammelt wird als in einem herkömmlicher Aufbau. Das Mikroskop-Objektiv wird in konfokaler Geometrie verwendet, es dient auch zur Fokussierung der Anregung.

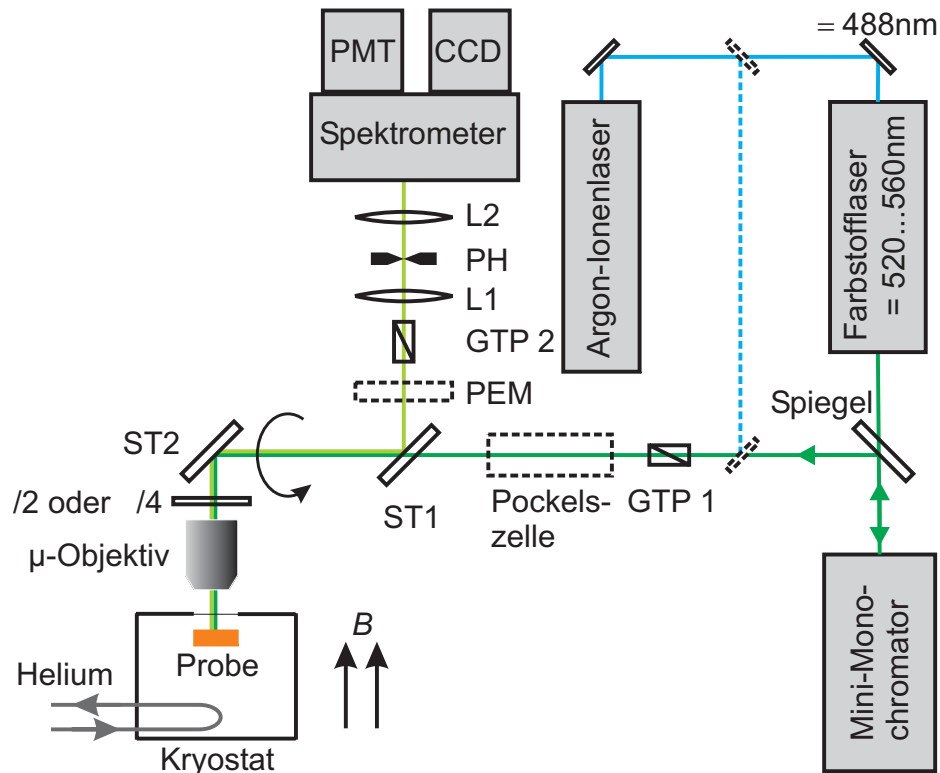


Abbildung 3.8: Schematischer Messaufbau für polarisationsaufgelöste Mikro-PL Spektroskopie. Optionale Komponenten sind gestrichelt eingezeichnet. Alle links vom Pfeil \odot eingezeichneten Objekte folgen einem Strahlengang, der senkrecht zur Papierebene gedreht ist.

Die Versuchsanordnung ist in Abb. 3.8 skizziert. Die QP in der Probe werden entweder nichtresonant mit einer einzelnen Linie eines Ar-Ion-Lasers oder resonant mit einem Farbstofflaser, gepumpt vom Ar-Ion-Laser, angeregt. Die Probe befindet sich auf dem Kühlfinger eines He-Durchflusskryostaten, die Probentemperatur lässt sich über die Durchflussmenge des Heliums regulieren. Zusätzlich kann ein externes Magnetfeld bis zu 5 Tesla in Faraday-Geometrie angelegt werden.

Es können sowohl PL als auch PL-Anregungsspektren (PLE⁶) aufgenom-

⁶Photo-Luminescence-Excitation: Messung bei fixer Detektionsenergie in Abhängigkeit

men werden. Insbesondere im letzteren Fall wird der Farbstofflaser verwendet. Zur Manipulation der Anregungspolarisation dient eine eingebaute Verzögerungsplatte zwischen dem Mikroskop-Objektiv und dem Strahlteiler „ST 2“. Die Verwendung des Strahlteilers an dieser Stelle ist notwendig, um die Polarisation des reflektierten Lichts zu kontrollieren, worauf im nächsten Abschnitt eingegangen wird. Zum anderen wird an dieser Stelle ein Teil des PL-Lichts durch den Strahlteiler „ST 2“ transmittiert und kann zur *in situ*-Betrachtung der Probe genutzt werden. Mithilfe einer Positioniereinrichtung für den Kryostaten samt Probe (nicht eingezeichnet) kann so eine einzelne Mesa-Struktur leicht und reproduzierbar selektiert werden.

Je nach Anforderung kann zirkular ($\lambda/4$ Platte) oder linear ($\lambda/2$ Platte) polarisiertes Licht auf die Probe gestrahlt werden. Im letzten Fall kann der Winkel zwischen dem Feldvektor des eingestrahlten Lichts und den Kristallachsen eingestellt werden. Diese Platte manipuliert gleichzeitig ebenso die Polarisation der Lumineszenz⁷. Zum Trennen von Anregung und Detektion dient der Strahlteiler „ST 1“. Das parallele Strahlbündel der PL wird nach spektraler Zerlegung im Spektrometer mithilfe einer CCD-Kamera oder eines Photomultipliers mit anschließender Einzelphotonzählung detektiert.

Durch den konfokalen Aufbau des Messplatzes muss Streulicht besonders berücksichtigt werden. Zur Unterdrückung wird die Probe vergrößert auf eine Lochblende „PH“ (Lochdurchmesser 50 μm) abgebildet, so dass nur Licht aus der unmittelbaren Mesa-Umgebung in den Detektor gelangt. Zusätzlich wird bei kleinem Energieabstand zwischen Anregung und Detektion ein Doppelmonochromator (Spex, lineare Dispersion 0.47 nm/mm) mit einstellbarem Mittelspalt verwendet. Bei nichtresonanter Anregung kann ein Farbfilter bzw. ein Kantenfilter verwendet werden. Da bei der PLE-Spektroskopie ein Farbstofflaser (FSL) verwendet wird, sind besondere Maßnahmen zur Unterdrückung der auftretenden breitbandigen FSL-Lumineszenz nötig. Diese wird durch die Verstärkung von spontaner Emission im FSL-Resonator verursacht. Insbesondere bei resonanter Anregungsspektroskopie an nichtmagnetischen CdSe QP, bei der die Detektionsenergie in unmittelbarer Nähe zur Anregungsenergie liegt, ruft diese FSL-Lumineszenz einen starken Untergrund hervor, der das eigentlich zu detektierende Signal der einzelnen QP überlagert. Aufgrund des eingebauten Polarisators „GTP 1“ hat die FSL-Lumineszenz dieselbe lineare Polarisation wie die Laserlinie selbst. Zur simplen Unterdrückung des Untergrunds ist es daher ausreichend, wenn die Polarisationen von Anregung und Detektion aufeinander senkrecht stehen. Das

von der Anregungsenergie

⁷In Verbindung mit dem Analysator „GTP 2“ vor dem Spektrometer führt dies allerdings nur zu einer Veränderung der *Intensität* der Lumineszenz

erfolgt mit Hilfe der Polarisatoren „GTP 1“ und „GTP 2“. Bei *paralleler* Polarisierung von Anregung und Detektion ist der Untergrund durch die FSL-Lumineszenz ca. eine Größenordnung stärker als das Signal eines einzelnen Quantenpunkts. Zum Unterdrücken dieses Untergrunds kommt ein Minimonochromator (siehe Abbildung 3.8) zum Einsatz. Dieser stellt ein spektrales Filter $F(\lambda)$ dar, das sich vereinfacht mit $F(\lambda) = q\Theta(\lambda_0 - \lambda)$ durch eine Θ -Stufenfunktion beschreiben lässt⁸. Der Anteil der FSL-Lumineszenz mit $\lambda > \lambda_0$ wird abgeschnitten. λ_0 kann dabei frei gewählt und der jeweiligen Detektionswellenlänge angepasst werden. Die Effizienz $q \approx 0.3$ des Filters ergibt sich aus den verwendeten optischen Komponenten. Bei paralleler Polarisierung von Anregung und Detektion ist damit eine Messung einzelner Quantenpunkte mit Anregung bis 10 meV oberhalb der Detektionsenergie möglich. Erfolgt die Detektion gekreuzt polarisiert zur Anregung, ist letztere bis 0.5 meV oberhalb der Detektionsenergie möglich.

Polarisationskontrolle

Bei der Spektroskopie einzelner Quantenpunkte sind wegen der geringen Signalstärke lange Integrationszeiten $\tau_{\text{Int}} \approx 10 \dots 1000$ s nötig. Die Grenzen der Stabilität der Messapparatur führen dabei zu zeitlichen Intensitätsschwankungen des Messsignals auf der Zeitskala von Sekunden. Da bei polarisationsaufgelösten Messungen die Intensität zweier Zustände in jeweils einer separaten Messung aufgenommen werden muss, kann bei sequentiellen Messungen der Messfehler sehr groß werden. Als Ausweg wird statt dessen bei Untersuchungen, in denen das Intensitätsverhältnis zwischen zwei Messungen bestimmt werden soll, die Polarisation zeitlich schnell gegen die Messzeit moduliert ($\tau_{\text{Modulation}} \ll \tau_{\text{Mess}}$) und die Signale synchron zum jeweiligen Polarisationszustand aufgezeichnet. Es werden so zeitgleich zwei Spektren aufgezeichnet, die mit jeweils einem bestimmten Polarisationszustand korreliert sind. In diesem Fall werden die zeitlichen Intensitätsschwankungen über beide Teilmessungen gemittelt. Das Verhältnis der Zählraten in beiden Kanälen ist dann frei von überlagerten Schwankungen, wenn die Modulationszeit klein ist gegen die Zeiten der auftretenden Intensitätsschwankungen des Gesamtsignals. Durch eine solche sequentielle Aufzeichnung ist eine genauere Messung des Polarisationsgrades an jedem Punkt eines Spektrums möglich. Dieser Aufbau liefert eine Messgenauigkeit des Polarisationsgrads von ca. 3%.

Das Lumineszenzlicht von der Probe passiert auf seinem Weg zum Detektor die Strahlteiler. Unterschiedliche Reflexionskoeffizienten am Strahlteiler für s- und p-polarisiertes Licht (relativ zum Strahlteiler) führen zu unter-

⁸Die Kante bei λ_0 ist dabei natürlich nicht unendlich scharf

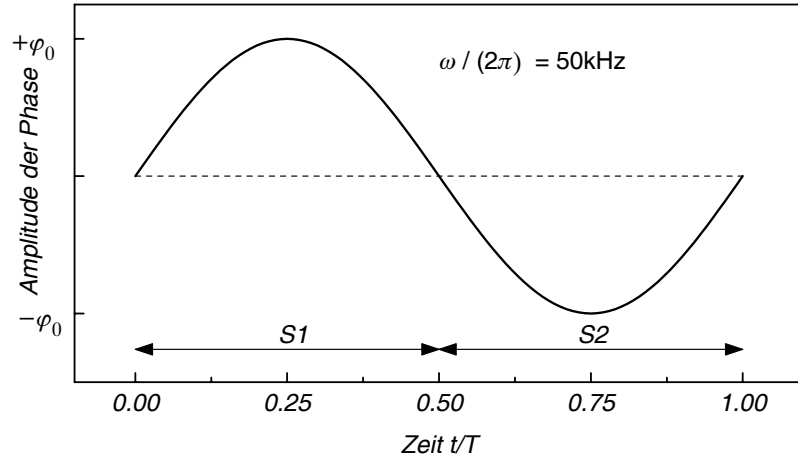


Abbildung 3.9: Messprinzip der Polarisationskontrolle mit photoelastischem Modulator. Das Messsignal wird gespeichert in zwei Kanälen $S1$ und $S2$.

schiedlichen Intensitäten und damit zu einer Veränderung des Polarisationsgrades hinter dem Strahlteiler. Dieser Effekt wird dadurch kompensiert, dass zwei *identische* Strahlteiler benutzt werden, die zueinander gedreht sind, wie durch den Pfeil in der Abb. 3.8 angedeutet. Lumineszenzlicht, das bezüglich des ersten Strahlteilers s(p)-polarisiert ist, hat am zweiten Strahlteiler die umgekehrte p(s)-Polarisation. Entsprechende Überlegungen gelten auch für Überlagerungen der beiden Richtungen, so dass die Gesamtrefektivität der Strahlteiler unabhängig von der Polarisation ist und der Polarisationsgrad des Lumineszenzlichts hinter den beiden Strahlteilern derselbe ist wie vor den Strahlteilern, lediglich die Intensität des Lichts ist geringer.

Es werden zwei Fälle unterschieden, zum einen die Analyse der Polarisation des zu detektierenden Lumineszenzlichts, zum anderen die Modulation der Polarisation der Anregung. Im ersten Fall kommt ein photoelastischer Modulator (PEM) zum Einsatz (Hinds Modell PEM-90), der akustisch Doppelbrechung in einem Quarzkristall induziert. Wie aus Abb. 3.8 ersichtlich, beeinflusst er nur das zu detektierende Licht, welches von der Probe kommt. Das Messprinzip ist in Abb. 3.9 dargestellt. Im Vergleich zu ähnlichen Verfahren, die auf einer Lock-In Technik beruhen, erfolgt hier eine stetige Aufzeichnung des Signals, aufgeteilt in zwei Kanäle $S1$ und $S2$. Diese enthalten jeweils das integrierte Signal einer Halbwelle. Die Phase ist gegenüber der Anregung fixiert, weil sichergestellt ist, dass die physikalischen Zeitabläufe, die hier eine Rolle spielen, schnell ablaufen gegen die Frequenz der Modulation. Die Phase ist gleich null für $S1$ bzw. gleich einer halben Periode für $S2$.

Der PEM moduliert mit der Frequenz $\frac{\omega_{\text{PEM}}}{2\pi} = 50 \text{ kHz}$ die Phase zwischen

den zueinander senkrecht stehenden elektrischen Feldvektoren des transmittierten Lichts. Die Modulation der Phasenverschiebung erfolgt sinusförmig mit $\varphi(t) = \varphi_0 \sin(\omega_{\text{PEM}} t)$. Ein Wert von $\varphi_0 = 2\pi$ bedeutet eine Phasenverschiebung zwischen der s- und p-polarisierten Komponente der Photolumineszenz von einer vollen Wellenlänge λ . Bei Wahl der Amplitude $\varphi_0 = 0.383\lambda$ lässt sich die Differenz des integrierten Signals unter beiden Halbwellen $\Delta S = S_1 - S_2$ darstellen als $H_0(\varphi_0)(I_+ - I_-)$. Dabei ist H_0 die Struvefunktion [60] mit $H_0(\varphi_0) = 0.749$, und I_{\pm} sind die oben bereits eingeführten Intensitäten des σ^{\pm} polarisierten Lichts. Der Wert für φ_0 ergibt sich aus der ersten Nullstelle der Besselfunktion $J_0(\varphi_0) = 0$. Hinter dem PEM sorgt ein Analysator für eine Umwandlung der Polarisationsmodulation in eine Intensitätsmodulation. Der zeitliche Verlauf der Intensität wird synchron zum PEM-Signal detektiert. Zur korrekten Analyse sind die Hauptachsen von Analysator und PEM dabei um 45° gegeneinander gedreht. Bei entsprechender Kombination der Parameter und Verzögerungsplatten lassen sich so sukzessiv alle Stokesparameter bestimmen⁹ und beliebig elliptisch polarisiertes Licht vollständig charakterisieren. Durch die beiden sich kompensierenden Strahlteiler ist, wie oben beschrieben, sichergestellt, dass der vom PEM analysierte Polarisationsgrad derselbe ist wie direkt an der Probe.

Im zweiten Fall wird die Anregungspolarisation moduliert. Dazu wird vor „ST1“ eine Pockelszelle (Modell LM 0202 von Linos) platziert. Diese moduliert den Strahl des Anregungslasers mithilfe elektro-optisch induzierter Doppelbrechung in einem K*DP-Kristall¹⁰ und schaltet so zwischen zwei linear polarisierten Zuständen hin- und her. Elektrische Feldrichtung und Lichtstrahlrichtung stehen dabei senkrecht aufeinander. Die Periode der Modulation ist ebenso einstellbar wie deren Amplitude, die den Polarisationswinkel zwischen beiden Strahlen reguliert. Damit können auch bei variabler Wellenlänge die beiden Strahlen stets zueinander senkrecht polarisiert eingestellt werden. Das Lösungsverhältnis des Modulators ist größer als 250:1, d.h. eine eingestellte Richtung des Feldvektors des durchgehenden Lichts enthält einen Intensitätsanteil von maximal 0.4% der dazu senkrecht polarisierten Komponente. Die Anregung passiert „ST1“ in Transmission und wird an „ST2“ reflektiert. Da sich beide Strahlteiler in dieser Konfiguration nicht kompensieren, sind die beiden linear polarisierten Zustände an den s- bzw. p-Achsen der beiden Strahlteiler ausgerichtet¹¹. Anderenfalls kommt es durch die Strahlteiler zu undefiniert elliptischer Polarisation der Anregung. Durch die unterschiedlichen Reflexions- und Transmissionskoeffizienten der

⁹Eine Einführung in die Stokesparameter findet sich in [61].

¹⁰Kalium-Dihydrogenphosphat

¹¹Nur für diese beiden Achsen ist die unbekannte Phasenbeziehungen zwischen s- und p-Richtung an den Strahlteilern irrelevant.

beiden Strahlteiler in Abb. 3.8 unterscheiden sich die Anregungsintensitäten für beide Polarisationsrichtungen voneinander. Beim Vorhandensein von Sättigungseffekten führen diese zu einem PL-Signal, das nicht linear proportional zur Anregungsintensität verläuft. Um diese Effekte zu vermeiden, sollen für beide Polarisationsrichtungen der Anregung die Intensitäten ähnlich groß sein. Deshalb wird zusätzlich eine achromatische $\lambda/2$ Verzögerungsplatte zwischen „ST1“ und „ST2“ gestellt. Diese vertauscht den s- und p-Charakter des Lichts zwischen den beiden Strahlteilern. Durch die gegebenen Parameter für Reflexions- und Transmissionskoeffizient der Strahlteiler gleichen sich die Intensitätsunterschiede in der Anregung weitgehend wieder aus. Für die Detektion der QP-Photolumineszenz kompensieren sich die beiden Strahlteiler mit der zusätzlichen $\lambda/2$ Platte nun nicht mehr. Da bei dieser Anregungsvariante aber stets nur eine Polarisationsrichtung detektiert wird, spielt dies keine Rolle: der Analysator „GTP 2“ vor dem Spektrometer führt nur zu einer Intensitätsänderung des PL-Signals, unabhängig von dessen Polarisation.

Als Referenzgeometrie für polarisationsaufgelöste Messungen wird hier kurz die Porto-Notation erwähnt, die hauptsächlich bei der Ramanspektroskopie verwendet wird. Damit wird die Bezeichnung von Achsen unabhängig von einem „Labor“-System und ganz auf die beteiligten Komponenten reduziert.

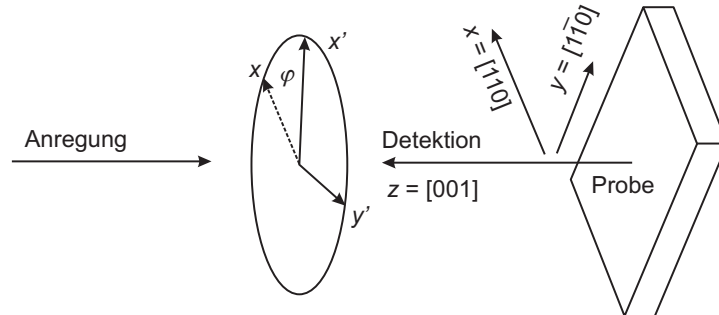


Abbildung 3.10: Definition der Polarisationsrichtung von Anregung und Detektion relativ zu den Kristallachsen.

Bei allen dargestellten Messergebnissen erfolgt die Detektion in $+z$ -Richtung, die Anregung antiparallel dazu in $-z$ -Richtung. Die Polarisation bzw. die Richtung des Feldvektors des Lichts ist auf die Probe bezogen und wird über die Achsen x' und y' festgelegt, die zu den Kristallachsen $x \parallel [110]$ und $y \parallel [1\bar{1}0]$ um einen Winkel φ gedreht sind (siehe Abb. 3.10).

Kapitel 4

Spinstruktur nichtmagnetischer geladener Quantenpunkte

Geladene Quantenpunkte bieten die Möglichkeit, einzelne Ladungsträger zu untersuchen. Im Gegensatz zu neutralen QP, wo sich die Anzahl der Elektronen mit der Anzahl der Löcher kompensiert, können hier aufgrund der Teilchenkonfiguration Elektron und Loch getrennt voneinander betrachtet werden. Der elementare optische Anregungszustand ist das Trion, die hier untersuchten Trionen sind einfach negativ geladen. Mithilfe des Trions bietet sich die Möglichkeit zur gezielten optischen Manipulation bzw. Kontrolle des Spins des Ladungsträgers, der nach Rekombination im QP verbleibt - im hier vorliegenden Fall ein Elektron. Die Ergebnisse dieser Experimente finden sich in den Kapiteln 4.3 und 4.5.4. Große Bedeutung kommt dabei Zuständen des Trions zu, in denen sich eines der beiden Elektronen in einem angeregten Zustand befindet, insbesondere dem Triplettzustand. Deshalb wird dieser Zustand ausführlich in Kap. 4.5 eingeführt. Die hier auftretende Feinstruktur wird analysiert und physikalisch mit der Spinstruktur des Mehrteilchen-Komplexes begründet, ebenso wie die Polarisationsseigenschaften der optischen Übergänge.

Neben Anregungszuständen, in denen ein Elektron eine höhere Schale besetzt, kann auch das Loch in höheren Anregungszuständen vorliegen. Besonders interessant ist in diesem Fall die kompliziertere Bandstruktur, deren Entartung am Γ -Punkt durch das Einsperrpotential aufgehoben ist. Die Kopplung zwischen leichten und schweren Löchern führt zu einer polarisierten Emissionscharakteristik. Eine Untersuchung verschiedener Lochzustände zeigt die Abhängigkeit des Polarisationsgrads vom Energieabstand zwischen leichtem und schwerem Loch. Wie in Kap. 4.3 gezeigt wird, ist über angeregte Lochzustände eine optische Orientierung des residenten Elektrons möglich.

Um die Untersuchungen an einzelnen Trionen zu motivieren, wird im

nächsten Kapitel der Effekt der negativen zirkularen Polarisation am QP-Ensemble vorgestellt und die Notwendigkeit von Untersuchungen an einzelnen QP dargelegt. Dann werden zunächst die geladenen Quantenpunkte anhand ihrer Emissionslinien im Spektrum identifiziert und von der Emission neutraler QP unterschieden. Die grundlegenden Eigenschaften des Spektrums einzelner geladener QP werden genauer untersucht, bevor eine optische Kontrolle des Spins des residenten Elektrons nachvollzogen wird.

4.1 Motivation: Negative zirkulare Polarisation am QP-Ensemble

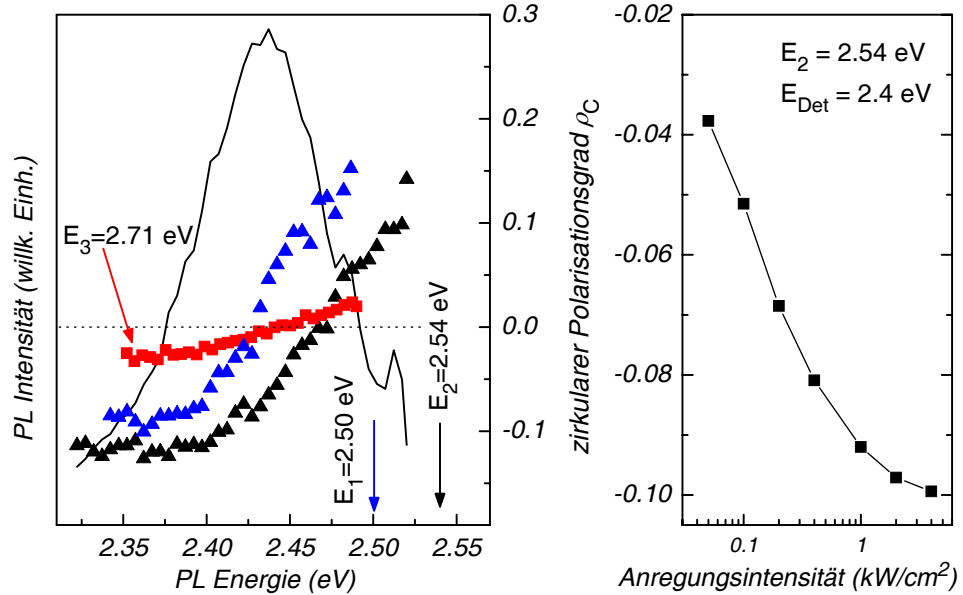


Abbildung 4.1: Links: PL und ρ_C eines QP-Ensembles bei unterschiedlichen Anregungsenergien. Die Anregung ist zirkular polarisiert mit $I_{\text{Anr}} = 1 \text{ kW/cm}^2$. Die PL-Kurve ist bei der Anregungsenergie 2.54 eV aufgenommen. Rechts: Zirkularer Polarisationsgrad bei $E_{\text{PL}} = 2.40$ eV in Abhängigkeit von I_{Anr} .

Im linken Teil der Abb. 4.1 ist für ein Ensemble aus ca. 10^5 angeregten Quantenpunkten die PL und deren zirkularer Polarisationsgrad $\rho_C = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-}$ bei drei verschiedenen Anregungsenergien aufgetragen. Mit I^\pm ist die Intensität der σ^\pm polarisierten Emission bezeichnet. Das PL-Maximum liegt bei 2.43 eV, die Halbwertsbreite beträgt ≈ 80 meV. Form und Breite des Ensemble-Spektrums variieren nur unwesentlich mit der Anregungsenergie,

Ausnahme ist der Energiebereich unmittelbar unterhalb der Anregungsenergie. Die dargestellte Kurve entspricht der Anregungsenergie 2.54 eV und zeigt oberhalb von etwa 2.48 eV zwei deutlich ausgeprägte LO-Phonon-Replika. Diese weisen auf eine effektive Anregung unter Emission von LO-Phononen hin.

Für die höchste Anregungsenergie $E_1 = 2.71$ eV, weit oberhalb der Absorptionskante der Restschicht, ist nur eine vernachlässigbare Polarisierung des PL-Signals zu erkennen. Durch die große Zustandsdichte in der Benetzungsschicht kommt es vermehrt zu Streuprozessen, bevor die Ladungsträger in die tiefsten QP-Zustände relaxieren. Damit ist kein spinerhaltendes Einfüllen von Ladungsträgern in die QP mehr gewährleistet und die Energiekante der Restschicht begrenzt die Möglichkeiten zur Spinmanipulation.

Anders ist die Situation dagegen bei Anregung der QP unterhalb der Absorptionskante der Restschicht. Deutlich ist für die Anregungsenergien $E_{\text{Anr}} = 2.50$ eV und $E_{\text{Anr}} = 2.54$ eV zu erkennen, dass die Polarisierung auf der hochenergetischen Seite der Ensemble-PL ko-polarisiert zur Anregungspolarisation ist. Jedoch wird ρ_C mit größerem Abstand zur Anregung kleiner und wird schließlich deutlich negativ. Bei noch größeren Energiedifferenzen bleibt der Wert von ρ_C konstant negativ. Der absolute Wert der negativen Polarisierung ist eine wachsende Funktion der Anregungsintensität, wie das Diagramm $\rho_C(I_{\text{Anr}})$ im rechten Teil der Abb. 4.1 zeigt.

Interessanterweise liegt die Energieposition des Vorzeichenwechsels von ρ_C konstant ca. 80 meV unterhalb der Anregung und verschiebt parallel mit der Anregungsenergie. Die Polarisierung hängt damit von der Anregungsenergie *relativ* zum einzelnen QP ab und nicht von einer intrinsischen Eigenschaft des Gesamtensembles. Das spricht für eine monomodale Verteilung der QP über die PL-Bande. Der Wert der Energiedifferenz legt einen Zusammenhang mit dem Triplettzustand nahe (siehe Kap. 4.5), ist jedoch durch die inhomogene Verbreiterung des Ensembles nicht zwingend.

Das Auftreten von negativer zirkularer Polarisierung ist offensichtlich eine allgemeine Eigenschaft von negativ geladenen QP [62]. Diese Beobachtung wird ebenso an III-V Quantenpunkt-Ensembles [63, 64, 65] als auch an einzelnen QP gemacht [66]. Cortez *et al.* interpretieren sie mit einer optischen Orientierung des residenten Elektronspins in geladenen QP. Essentiell für diese Erklärung ist dabei ein kombinierter Elektron-Loch Spinumklapp am Triplettzustand des Trions. Die Ursache kann jedoch nicht allein aus Ensemble-Messungen wie in Abb. 4.1 ermittelt werden. Zum einen kann im Ensemble keine eindeutige Zuordnung zum Triplettzustand der Trionen erfolgen, zum anderen besteht die PL des Ensembles aus der Emission von geladenen sowie ungeladenen QP. Neutrale QP tragen wegen der linear polarisierten Emission des Grundzustandes nicht zur zirkularen Polarisierung des Ensemble-Signals

bei (siehe Kap. 2.2.1) und beeinflussen eine quantitative Analyse [67]. Da die Sättigungsintensitäten der einzelnen QP unterschiedlich sind, können auch Multiexzitonen-Zustände angeregt werden. Für eine eindeutige Identifikation sind deshalb Messungen an einzelnen QP erforderlich, diese werden in den folgenden Kapiteln vorgestellt.

Neben einer möglich erscheinenden Spinorientierung über den Triplettzustand des angeregten Trions kann auch über die Beteiligung unterschiedlicher Bänder eine Spinorientierung des Elektrons erreicht werden [68]. Der erste angeregte Zustand im PLE-Spektrum des Trions wird mit einem angeregten Lochzustand assoziiert. Hier zeigt sich, dass eine Kopplung zwischen leichten und schweren Löchern großen Einfluss auf die Polarisations-eigenschaften hat und die Möglichkeit zu einer optischen Orientierung des residenten Elektronspins bietet.

4.2 Identifikation von Trionen

Zur Auswahl einzelner geladener QP für alle weiteren Messungen ist es in Voruntersuchungen notwendig, diese eindeutig zu identifizieren und einzelne Emissionslinien im Spektrum zweifelsfrei dem Zerfall eines Trions im Grundzustand in einem geladenen QP zuzuordnen. Ohne externes Magnetfeld liefern Trionen und Exzitonen einzelne spektral scharfe Linien. Diese sind nicht unterscheidbar, sofern letztere aus sehr symmetrischen Quantenpunkten¹ stammen [69] und sofern beide Linien von der Emission eines Grundzustandes herrühren, was in den überwiegenden Fällen der Untersuchungen der Fall ist. Dann ist die Energieaufspaltung des Exzitons infolge der anisotropen Austauschwechselwirkung (siehe Kap. 2.2.1) kleiner als die Linienbreite². Der mittlere Wert für die Aufspaltung liegt bei $\Delta_1 = 200\mu\text{eV}$ [18, 26], jedoch lässt eine einzelne, spektral isolierte Linie noch keinen Rückschluss auf den Ladungszustand des Quantenpunkts zu.

Auch in einem externen longitudinalen Magnetfeld $\vec{B} \parallel z$ unterscheidet sich die Aufspaltung der Linien zwischen geladenen und symmetrischen ungeladenen Quantenpunkten nicht, weil die zugehörigen g -Faktoren $g_{X,z}, g_{X^-,z} = |g_{\text{hh},z} - g_e|$ identisch sind. Sowohl Emissionslinien von geladenen wie auch von ungeladenen Linien spalten hier in jeweils zwei Komponenten auf. Sofern die anisotrope Aufspaltung am Exziton kleiner ist als die spektrale Auflösung, scheinen bei Extrapolation $B \rightarrow 0$ seine beide Komponenten aus einer ursprünglichen Linie zu stammen, d.h. es gibt keine messbare Nullfeld-Aufspaltung. So kann in dieser Geometrie nicht zwischen Exziton und Trion

¹Maßgebend ist hier die D_{2d} Symmetrie

²Die Linienbreite ist meistens gegeben durch die spektrale Auflösung des Messaufbaus.

unterschieden werden, da am Trion unabhängig von seiner Symmetrie ebenfalls beide Linien aus einem Ursprung stammen.

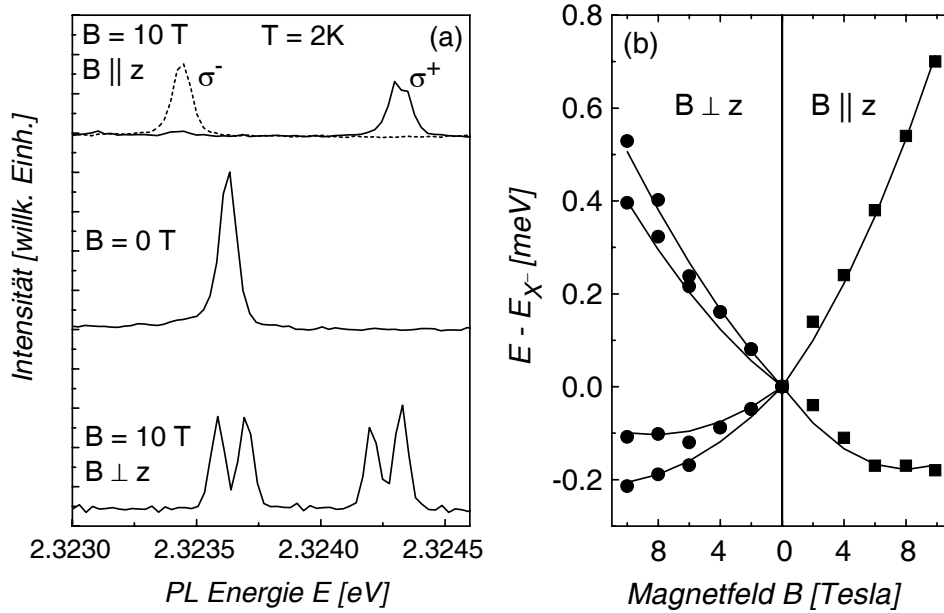


Abbildung 4.2: a) Magnetfeldaufspaltung der PL eines geladenen QP im Feld parallel (oben) bzw. senkrecht zur Wachstumsrichtung [001]. b) Magnetchart für ein Trion, Faraday (rechts) und Voigt Geometrie (links). Aufspaltung sowie diamagnetische Verschiebung.

Neben anderen notwendigen Kriterien bietet die PL-Spektroskopie im transversalen externen Magnetfeld (Voigt-Geometrie, $\vec{B} \perp z$) ein hinreichendes Verfahren zur Bestimmung der trionischen Natur einer Linie. Ein typisches Spektrum ist in Abb.4.2 a) dargestellt. Um sicherzugehen, dass sich in einem Quantenpunkt im zeitlichen Mittel höchstens ein Elektron-Loch Paar befindet, wird nur eine geringe Anregungsdichte verwendet ($I_{\text{Anr}} \lesssim 100\text{ W/cm}^2$), d.h. die Bildung von Bi- oder Multiexzitonenkomplexen wird reduziert. Die Quantenpunkte werden oberhalb der Restschicht angeregt, dessen Energieposition (2.52 eV) aus PLE-Spektren am QP-Ensemble [54] bekannt ist. Wie erwähnt, spaltet die Linie eines Trions in Faraday-Geometrie – siehe Abb. 4.2 a) oben – in zwei Komponenten auf. Aufgrund des Diamagnetismus liegen diese energetisch nicht symmetrisch zur Emission bei $B = 0$, sondern unterliegen zusätzlich zur Aufspaltung einer Verschiebung ins Höherenergetische. In Voigt-Geometrie sind alle vier Übergänge gemäß Gl. (2.9) erlaubt, weil die Spinzustände aneinander koppeln. Wie Abb. 4.2 b) zeigt, lassen sich alle vier Komponenten für $B \rightarrow 0$ auf einen gemeinsamen

Ursprung extrapolieren.

Im Gegensatz dazu sind bei Exzitonen die Zustände mit $J_X = 2$ (dunklen Exzitonen) energetisch verschoben. Sie liegen im Mittel $\Delta_0 = 1.9$ meV niederenergetisch der Emission der hellen Exzitonen aufgrund der isotropen Elektron-Loch Austauschwechselwirkung [26]. Auch die $J_X = 2$ Zustände werden bei angelegtem Magnetfeld in Voigt-Geometrie sichtbar durch die Kopplung zwischen hellen und dunklen Exzitonen. Das helle Exziton spaltet in Voigt-Geometrie nur in zwei Linien auf, darüber hinaus ist die Aufspaltung wegen der Kopplung mit den dunklen Exzitonen wesentlich schwächer als in Faraday-Geometrie und das Linienpaar strebt von den dunklen Exzitonen weg ins Höherenergetische. Die dunklen Exzitonen erscheinen niederenergetisch und streben ebenfalls von den hellen Exzitonen weg („level repulsion“)³. Die Nullfeldaufspaltung, die durch den Wert von Δ_0 verursacht wird, ist i. A. größer als die spektrale Auflösung der Messapparatur.

Diese Tatsache sowie das Verhalten in Voigt-Geometrie können zur Unterscheidung zwischen geladenen und neutralen QP herangezogen werden. Es lässt sich eindeutig feststellen, dass die zwei bzw. vier Linien eines Exzitons im Gegensatz zum Trion *keinen* gemeinsamen Ursprung besitzen, und die Methode bietet demnach ein hinreichendes Unterscheidungskriterium der Emissionslinien.

Man erkennt in Abb. 4.2, dass mit der Aufspaltung des Trion-Grundzustandes im externen Magnetfeld unterschiedlich große g -Faktoren assoziiert sind. Nach Abzug der diamagnetischen Verschiebung ist die Energieaufspaltung sowohl in Faraday- als auch in Voigt-Geometrie in sehr guter Näherung linear abhängig vom angelegten Magnetfeld. Gemäß Gl. (2.7) errechnet sich ein longitudinaler g -Faktor $g_{X,z} = 1.54 \pm 0.08$. Dieser Wert wird über viele gemessene QP gemittelt [70, 26, 71] und ist – wie eingangs erwähnt – identisch für geladene und ungeladene QP. Auch andere Gruppen finden an CdSe QP ähnliche Werte [15]. Mit Gl. (2.10) kann aus den Energiedifferenzen der Linien der transversale oder *in-plane* g -Faktor von Elektron sowie Loch bestimmt werden:

$$g_e = 1.1, \quad g_{h,z} = 2.6, \quad g_{h,\perp} = 0.2.$$

Hierbei wird ein isotroper g -Faktor des Elektrons angenommen [72]. Die Tatsache, dass vier Linien beobachtet werden, erfordert einen endlichen Wert für den transversalen g -Faktor $g_{h,\perp}$ des Lochs. Nur dadurch wird die Entartung der Übergangsenergien aufgehoben. Die Ursache des endlichen Wertes für $g_{h,\perp}$ in der QP-Wachstumsebene wird z.B. von Koudinov *et al.* näher untersucht [30]. Er wird durch eine Kopplung zwischen leichten und schweren

³Diamagnetische Effekte werden hier nicht berücksichtigt

Löchern verursacht, die im nächsten Kapitel näher dargestellt wird.

4.3 Schwerloch-Leichtloch Kopplung: Polarisation und optische Orientierung

Nachdem die Emission einzelner Linien aus dem Spektrum mit der oben erläuterten Methode der Rekombination einzelner Trionen im Grundzustand zugeordnet werden kann, werden nun charakteristische Eigenschaften dieser Linien aufgezeigt. Anschließend werden Trionen mit angeregten Lochzuständen beschrieben. Bei der Relaxation vom angeregten Loch- in den Grundzustand kann der Spin des residenten Elektrons orientiert werden.

4.3.1 Polarisation des Trion-Grundzustandes

Die Emission vom Trion-Grundzustand ist bei einigen Quantenpunkten messbar linear polarisiert. Das überrascht zunächst, denn ein reines Schwerloch-Trion, bestehend aus zwei Elektronen und einem schweren Loch, emittiert unpolarisiert. Die Wahrscheinlichkeiten für die Emission eines σ^\pm Photons bei der Rekombination sind gleich groß. Ursache der auftretenden Polarisation ist eine Kopplung des schweren Lochs mit dem energetisch abgespaltenen Leichtloch am Γ -Punkt. Sie tritt auf bei einer Kristallsymmetrie $< D_{2d}$, die z.B. durch Verspannungen oder Asymmetrien in der QP-Ebene hervorgerufen werden kann [25]. An *ungeladenen* QP führt die dann auftretende anisotrope Austauschwechselwirkung Δ_1 zwischen Elektron und Loch zu einer Kopplung zwischen den Grundzuständen mit $J_X = 1$. Am Trion jedoch nicht, da für Zustände mit halbzahligem Gesamtdrehimpuls das Kramers-Theorem gilt und die Entartung erhalten bleibt. Die an diesen trionischen Grundzuständen auftretende lineare Polarisation ist in erster Näherung vollständig durch eine Kopplung zwischen schweren und leichten Löchern hervorgerufen, wie im Folgenden erläutert wird.

Die Abb. 4.3 zeigt den linearen Polarisationsgrad $\rho_{\text{lin}}(\varphi)$ der Emission des Grundzustandes eines einzelnen geladenen Quantenpunktes. Die Anregung erfolgt dabei nichtresonant bei 2.54 eV und unpolarisiert, um das Ergebnis nicht zu verfälschen. Bei dem hier verwendeten Messverfahren (siehe Kap. 3.2.2) wird direkt ρ_{lin} gemessen, das über

$$\rho_{\text{lin}}(\varphi) = \frac{I(\varphi) - I(\varphi - \frac{\pi}{2})}{I(\varphi) + I(\varphi - \frac{\pi}{2})} \quad (4.1)$$

mit der winkelabhängigen Intensität $I(\varphi)$ der Emission zusammenhängt. Der Winkel φ bestimmt sich aus dem Winkel zwischen dem Analysator relativ zu

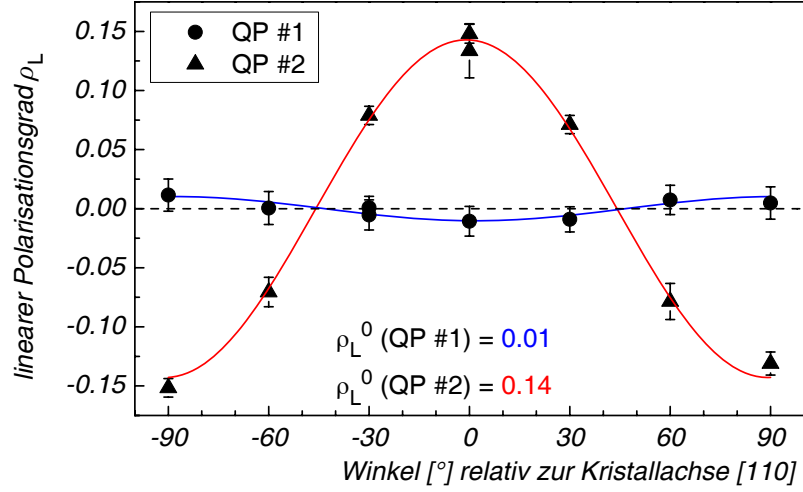


Abbildung 4.3: Lineare Polarisation der Emission des Trion-Grundzustandes zweier geladener Quantenpunkte in Abhängigkeit vom Winkel φ zwischen Kristallachsen und Analysator.

den Kristallachsen $[110]$ bzw. $[1\bar{1}0]$. Da Intensitätsschwankungen des Messsignals aufgrund wiederholter Justage auftreten, wird, wie unter Kap. 3.2.2 beschrieben, der Polarisationsgrad direkt gemessen.

Wie in der Abb. 4.3 zu erkennen, folgt der winkelabhängige lineare Polarisationsgrad $\rho_{\text{lin}}(\varphi)$ für beide dargestellten QP in sehr guter Näherung einem sinusförmigem Verlauf. Der Winkel φ kann daher so gewählt werden, dass der Wert des winkelabhängigen Polarisationsgrad gerade ein Maximum ρ_{lin}^0 besitzt. Der Zusammenhang zwischen den beiden ist gegeben durch:

$$\left(\rho_{\text{lin}}^0\right)^2 = \rho_{\text{lin}}(\varphi)^2 + \rho_{\text{lin}}\left(\varphi + \frac{\pi}{4}\right)^2. \quad (4.2)$$

Bei der Mehrzahl der analysierten QP-Spektren sind die Maxima zu einer der beiden ausgezeichneten Kristallachsen $[110]$ bzw. $[1\bar{1}0]$ ausgerichtet.

Das Verhalten der Intensität der Emission folgt in sehr guter Näherung einer Relation

$$I(\varphi) = I_0 \left[1 + \rho_{\text{lin}}^0 \cos(2(\varphi - \vartheta)) \right]. \quad (4.3)$$

Hierbei ist I_0 die mittlere Intensität der Emission und ϑ ein intrinsischer Winkel bezüglich der Kristallachsen $[110]$ bzw. $[1\bar{1}0]$ und dem Drehwinkel des Analysators.

Verursacht wird die lineare Polarisation wie angedeutet durch ein Koppeln von leichten und schweren Löchern. Der Lochanteil der Wellenfunktion, die

das Trion im Grundzustand beschreibt, lässt sich wie folgt schreiben [25]:

$$|\psi_h^\pm\rangle = \left|\pm\frac{3}{2}\right\rangle - \frac{\gamma^\pm}{\Delta E_{l-h}} \left|\mp\frac{1}{2}\right\rangle. \quad (4.4)$$

Der Zustand $|\mp\frac{1}{2}\rangle$ beschreibt ein leichtes Loch, das einen Spin von $\mp\frac{1}{2}$ einnehmen kann. Das Kopplungsmatrixelement $\gamma^\pm = \gamma \exp(\pm 2i\vartheta)$ beschreibt die Kopplungsstärke zwischen leichtem und schwerem Loch. Hieran lässt sich die laterale Ausrichtung des QP entlang der Kristallachsen wiederfinden, denn oft wird $\vartheta = 0, \pm\frac{\pi}{2}$ beobachtet. Die Energiedifferenz ΔE_{l-h} ist der Abstand zwischen denjenigen Zuständen des schweren und des leichten Lochs (siehe Anhang A), die miteinander koppeln. Es wird hier nur die Kopplung zwischen den jeweils niedrigsten Energieniveaus betrachtet. Neben dem bereits beschriebenen zirkular polarisierten Übergang des Schwerloch-Trions $|\pm\frac{3}{2}\rangle \rightarrow \sigma^\pm + |\pm\frac{1}{2}\rangle_e$ gibt es demnach einen Übergang des leichten Lochs

$$\left|\mp\frac{1}{2}\right\rangle \rightarrow \sigma^\mp + \left|\pm\frac{1}{2}\right\rangle_e, \quad (4.5)$$

der entgegengesetzt zirkular polarisiert ist. Im Allgemeinen ist die Emission vom Zerfall des zweifach entarteten Trion-Grundzustandes demnach linear polarisiert, wobei die Stärke gegeben ist durch γ und dem Energieabstand ΔE_{l-h} . Der Zusammenhang zwischen dem linearen Polarisationsgrad ρ_{lin} und der Kopplungsstärke zwischen leichtem und schwerem Loch im Grundzustand folgt aus den Dipolmomenten, danach lässt sich die Intensität des Übergangs schreiben als

$$I(\varphi) \propto [1 + u^2 + 2u \cos(2(\varphi - \vartheta))]. \quad (4.6)$$

Hierbei setzt sich die Hilfsgröße u zusammen aus $u = \frac{\kappa\gamma}{\Delta E_{l-h}}$; der Wert $\kappa = 1/\sqrt{3}$ beschreibt die reduzierte Stärke des Dipolmoments vom leichten Loch [68]. Ein Vergleich der Gleichungen (4.3) und (4.6) liefert

$$\rho_{\text{lin}}^0 = \frac{2\kappa\gamma\Delta E_{l-h}}{(\Delta E_{l-h})^2 + \kappa^2\gamma^2}. \quad (4.7)$$

Das bedeutet, der lineare Polarisationsgrad hängt bei fixer Kopplung γ nur vom Energieabstand zwischen dem schweren und leichten Loch ab. Gleichung (4.7) gilt für $\gamma \ll \Delta E_{l-h}$. Liegen die Zustände weit auseinander ($\Delta E_{l-h} \rightarrow \infty$), ergibt sich eine linear unpolarisierte Emission.

Für den gemessenen Polarisationsgrad ρ_{lin}^0 der beiden QP aus Abb. 4.3 errechnet sich

$$\gamma(\text{QP}\#1) \approx 0.01\Delta E_{l-h}, \quad (4.8)$$

$$\gamma(\text{QP}\#2) \approx 0.12\Delta E_{l-h}. \quad (4.9)$$

Damit bleibt – wie von diesem einfachen Modell gefordert – die Kopplung klein gegen den Energieabstand ΔE_{l-h} .

Die strenge Orientierung der Kopplung γ^\pm an den Kristallachsen wird auch bei überlagertem lateralem Magnetfeld beibehalten und zeigt, dass es sich um eine intrinsische Größe des individuellen QP handelt [30].

4.3.2 Trion mit angeregtem Lochzustand

Eine Möglichkeit, die Kopplung zwischen leichten und schweren Löchern auch in anderen Zuständen als dem Grundzustand des Trions zu beobachten, liefert die Anregungsspektroskopie, wie in Kap. 3.2.2 beschrieben. Durch Auswahl entsprechender QP kann der Energieabstand ΔE_{l-h} geeignet gewählt und sein Einfluss auf den Polarisationsgrad gemäß Gl. (4.7) getestet werden. Im Allgemeinen relaxieren angeregte Zustände schnell in den Grundzustand. Übereinstimmend dazu kann in den hier behandelten QP keine direkte PL aus angeregten Zuständen nachgewiesen werden. Durch die verwendete Analysetechnik können die Polarisationsgrade angeregter Zustände jedoch auch über die Detektion des Grundzustandes bestimmt werden.

Durch Beschränkung auf kleine Energien oberhalb des Grundzustandes ist es möglich, die Beobachtung auf Trion-Zustände mit angeregtem Loch zu reduzieren⁴. Allerdings reicht zur theoretischen Beschreibung der Schwerloch-Leichtloch Wechselwirkung ein simples Kopplungsmodell wie im Grundzustand nicht aus, es müssen höhere Zustände mit berücksichtigt werden.

In Abb. 4.4 ist ein Ausschnitt aus dem PLE-Spektrum eines geladenen QP dargestellt. Er umfasst die Anregung im ersten LO-Phonon (25...32 meV) sowie in der scharfen Resonanz des ersten angeregten Zustandes. Zunächst wird kurz auf die Polarisations-Charakteristik am LO-Phonon eingegangen.

Typisch für das Spektrum des QP ist der positive zirkulare Polarisationsgrad (in Abb. 4.4: $\rho_C \approx 0.5$) am ersten LO-Phonon, d.h. nach Relaxation erfolgt die Emission aus dem Grundzustand überwiegend ko-polarisiert zur Anregung. Es werden am LO-Phonon an einzelnen Trionen Werte bis zu $\rho_C = 0.85$ gemessen, in Übereinstimmung mit Messungen in [70].

Eine Absorption mit $E_{\text{Anr}} = E_{X^-}^S + \hbar\omega_{\text{LO}}$, d.h. um die Energie eines LO-Phonons oberhalb des Trion Grundzustandes, führt zur Erzeugung eines Polaron-Komplexes aus Trion und einem LO-Phonon. Die Spinrelaxation beim Zerfall des LO-Phonons bzw. der Relaxation in den Grundzustand ist gering, daher stellt sich die Frage nach der Ursache für einen Wert $\rho_C < 1$. Hierfür ist hauptsächlich die nicht perfekte Ausrichtung des Spins

⁴angeregte Elektronen-Zustände liegen energetisch höher, sie werden in Kap. 4.5.3 behandelt.

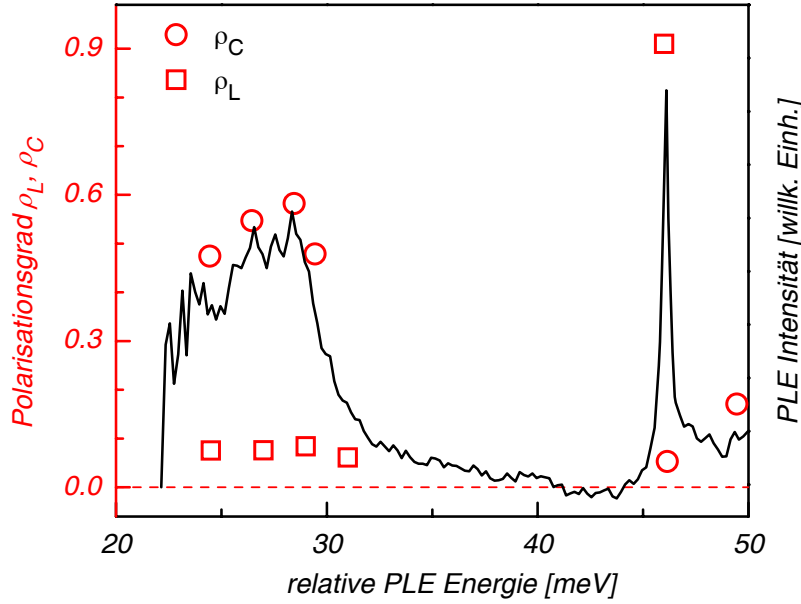


Abbildung 4.4: Schwarze Kurven: PLE-Spektrum eines Quantenpunkts (QP # 1). Rot: Polarisationsgrad des PLE-Signals, Anregung und Detektion erfolgt zirkular (Kreise) bzw. linear polarisiert (Quadrate). Die Abszisse bezeichnet die Energiedifferenz zum Grundzustand.

bei der Erzeugung des Komplexes verantwortlich [70]: Wie in (4.4) im vorangegangenen Kapitel beschrieben, koppeln schwere und leichte Löcher zu den Lochzuständen $|\psi_h^\pm\rangle$. Daher kann ein σ^+ Photon nicht nur bei entsprechender Spinorientierung $+\frac{1}{2}$ des residenten Elektrons zu $|\psi_h^+\rangle$ absorbiert werden sondern führt auch von residenten Elektronen mit Spinorientierung $-\frac{1}{2}$ zu $|\psi_h^-\rangle$ Trionen. Durch die zusätzliche Energie des Phonons liegt der Polaron-Komplex näher am ersten angeregten Lochzustand, was zu einer stärkeren Kopplung zwischen den beteiligten Leicht- und Schwerloch-Zuständen führt als im Grundzustand. Dafür spricht auch der lineare Polarisationsgrad in Abb. 4.4, dieser ist mit $\rho_{\text{lin}}^0 \approx 0.1$ größer als im Grundzustand. Weiter lässt sich am Polaron-Komplex abschätzen:

$$(\rho_{\text{lin}}^0)^2 + (\rho_C)^2 < 1. \quad (4.10)$$

Die Ursache hierfür ist Spinrelaxation. Ein Spinumklapp des Lochs im Polaron-Komplex ist wahrscheinlicher als im Grundzustand, da sich dieser Zustand näher am ersten angeregten Lochzustand befindet. Da die genaue Zusammensetzung des ersten angeregten Lochzustandes unbekannt ist, kann die Spinrelaxation hier nicht näher quantifiziert werden. Der Zerfall des LO-

Phonons selbst erfolgt hauptsächlich Spin-erhaltend in die Zustände $|\psi_h^\pm\rangle$. Die zunehmende Verringerung von ρ_C durch den kaskadierten Zerfall von LO-Phononen wird auch von Scheibner *et al.* gemessen [67].

Als zweiter Prozess ist auch ein Spinumklapp während der Lebensdauer des Trions denkbar. Dieser kann wie oben auf das Loch beschränkt werden, da die beiden Elektronen dieselbe Schale besetzen und dem Pauli-Prinzip unterliegen. Ein Spinumklapp eines Elektrons wäre nur mit dem Übergang eines der beiden Elektronen in die nächsthöhere Schale möglich, was aufgrund des großen Energieabstandes (≈ 80 meV, siehe Kap. 4.5.3) unwahrscheinlich ist. Für das Loch im Grundzustand werden Spinumklapp-Zeiten von ≈ 10 ns bestimmt [70], was lang ist gegen die Lebensdauer, daher ist eine Spinrelaxation im Grundzustand von untergeordneter Relevanz.

Die scharfe Resonanz oberhalb des LO-Phonons im PLE-Spektrum wird gemeinhin mit dem ersten angeregten Lochzustand assoziiert. Angeregte Elektronenzustände fallen wie oben beschrieben als Begründung für diese Linie aus. Die individuelle Energieposition schwankt von QP zu QP. Grundsätzlich wird an allen untersuchten geladenen QP im Bereich 35...48 meV oberhalb des Grundzustandes mindestens eine typische Resonanz gefunden. Wenn man die gemessenen Halbwertsbreiten von wenigen 100 μ eV einer rein homogenen Verbreiterung zuschreibt, lässt sich daraus auf Lebensdauern im ps-Bereich schließen. Zusätzlich könnte jedoch auch ein kleiner Jitter der Linien eine Rolle spielen. Ähnliche Werte für die Lage des ersten angeregten Zustandes werden auch von einzelnen CdTe-QP berichtet [73].

Die Polarisierung bei Anregung des Trions im ersten angeregten Lochzustand unterscheidet sich grundlegend von der im ersten LO-Phonon. Es zeigt sich bei dieser Anregungsenergie so gut wie keine zirkuläre Polarisierung. Der Zustand ist dagegen mit $\rho_{\text{lin}}^0 = 0.95$ nahezu vollständig linear polarisiert. Lediglich bei Einstrahlung von linear polarisiertem Licht bezüglich einer spezifischen Kristallachse tritt am ersten angeregten Lochzustand Absorption und ein Energietransfer in den Trion-Grundzustand auf. Dies zeigt die Abb. 4.5 im linken Teil für denselben QP. Hierbei wird die Polarisationsrichtung des Anregungslichtes gedreht, während die Emission vom Grundzustand mit fixierter Polarisationsrichtung detektiert wird. Im rechten Teil der Abbildung ist der Verlauf des linearen Polarisationsgrades bei Drehung der Anregung relativ zu den Kristallachsen zu sehen. Er kann sehr gut mit einer Sinusfunktion angepasst werden. Eine nahezu vollständige lineare Polarisation dieses Zustandes wird an weiteren QP gemessen, es zeigen sich vereinzelt aber auch kompliziertere Strukturen [74]. Der Effekt hängt demnach von den Details des Lochspektrums des jeweils betrachteten QP ab.

Ein Vergleich der Winkelabhängigkeit des linearen Polarisationsgrads zwi-

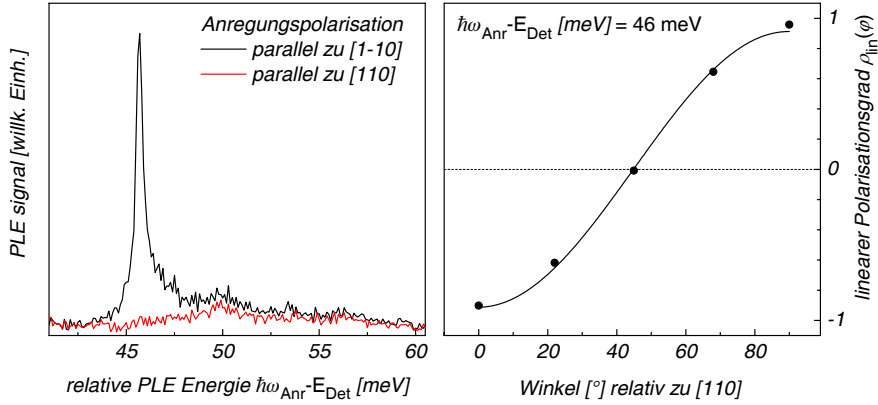


Abbildung 4.5: Links: Anregungsspektroskopie vom Trion-Grundzustand im Bereich des ersten angeregten Lochzustandes (QP # 1). Die Anregung ist linear polarisiert bezüglich der Kristallachsen. Die Detektion am Grundzustand erfolgt linear polarisiert mit fixierter Polarisationsachse. Rechts: Linearer Polarisationsgrad an der Resonanzenergie $\hbar\omega_{\text{Anr}} - E_{\text{Det}} = 46$ meV, für verschiedene Winkel der Anregungspolarisation.

schen Grundzustand und erstem angeregten Zustand zeigt eine identische Ausrichtung des Maximums entlang einer Kristallachse für den hier betrachteten QP. Zur Erklärung der Stärke des Polarisationsgrades reicht eine einfache Abschätzung nach Gl. (4.7) nicht aus, da diese nur für kleine Kopplungen, d.h. $\gamma \ll \Delta E_{\text{L-h}}$ anwendbar ist. Es wird deshalb eine Abhandlung von J. Kumar benutzt, die im Zusammenhang mit dieser Dissertation entstand [75]. Dabei werden die Loch-Eigenzustände im Quantenpunkt in der Bloch-Basis entwickelt. Optische Dipolregeln werden berücksichtigt. Das laterale Potential wird jeweils durch einen harmonischen Oszillator in x - und y -Richtung modelliert. Die laterale Anisotropie des QP wird durch einen Parameter beschrieben. Sie induziert die notwendige Kopplung zwischen leichten und schweren Löchern bei $k = 0$. Ein zweiter Parameter ist die Energiedifferenz zwischen leichtem und schwerem Loch. Details finden sich im Anhang A. Der experimentell ermittelte lineare Polarisationsgrad kann durch einen entsprechenden Parametersatz nachvollzogen werden. Der angeregte Lochzustand besitzt demnach einen hohen Leichtloch-Anteil.

4.3.3 Optische Orientierung des residenten Elektrons im Magnetfeld

Auch wenn die genaue Zusammensetzung des angeregten Lochzustandes mithilfe der hier dargestellten experimentellen Methoden nicht genauer bestimmt

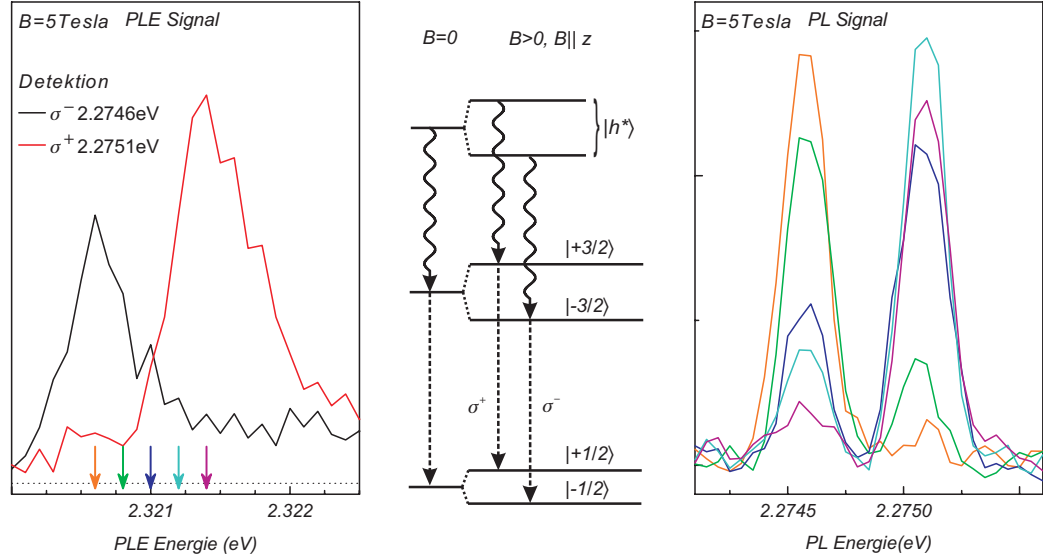


Abbildung 4.6: Links: Leichtloch-Zustand im Trion-PLE-Spektrum im externen Magnetfeld (QP # 1). Die Übergänge sind entkoppelt. Mitte: Übergangsschema vom angeregten in den Grundzustand, im externen Magnetfeld, die $lh-hh$ Kopplung im Grundzustand ist vernachlässigt. Rechts: PL-Spektren vom X^- Grundzustand bei $B = 5\text{ T}$ in Abhängigkeit von der Anregungsenergie. Die Farben korrelieren mit den Pfeilen im PLE-Spektrum links.

ist, kann gezeigt werden, dass bei seiner Anregung und der anschließenden Relaxation in den Trion-Grundzustand keine „sich kreuzenden“ Relaxationspfade auftreten: Zwar erfolgt z.B. bei σ^+ Anregung nach Relaxation in den Grundzustand sowohl σ^+ als auch σ^- Emission. Es erfolgt dabei aber kein Spinumklapp, sondern, wie bereits bekannt, ist die Polarisation der Emission definiert durch die Spinstruktur des Grundzustandes und des verbleibenden Elektrons: $|\pm\frac{3}{2}\rangle \rightarrow \sigma^\pm + |\pm\frac{1}{2}\rangle$. Das Auftreten beider Polarisationsrichtungen liegt vielmehr in der Präparation des Ausgangszustandes begründet, der linear polarisiert ist.

Zur genaueren Untersuchung wird die Entartung der beteiligten Zustände durch ein externes Magnetfeld (Faraday Geometrie) aufgehoben. Im linken Teil der Abb. 4.6 ist zu erkennen, dass der erste angeregte Lochzustand in einem externen Magnetfeld zweifach aufspaltet. Die unterschiedliche Höhe der beiden Peaks im PLE-Spektrum ergibt sich aus dem zeitlichen Abstand zwischen den beiden Messungen und bestimmt die Reproduzierbarkeit des Experiments. Durch die Breite der Peaks im Anregungsspektrum von $400\text{ }\mu\text{eV}$ ist die Größe des g -Faktors g' der Aufspaltung nur unzureichend zu bestimmen. Bei Beteiligung eines leichten Lochs wäre in einfachster Abhängigkeit

g' gegeben durch: $g' = |c_1 g_{hh} + c_2 g_{lh} - g_e|$. Dabei ist $g_{lh} = g_{hh}/3$ der g -Faktor des leichten Lochs, weiter gilt die Normierung $c_1^2 + c_2^2 = 1$. Das könnte ein weiteres Indiz für die Natur des angeregten Zustandes geben. Es zeigt sich aber, dass $g' \approx 1.5$ nahezu identisch mit dem Wert des Trion-Grundzustandes $|g_{hh} - g_e|$ ist, und demnach keine weiteren Erkenntnisse liefert.

Die beiden Kurven werden jeweils bei einer Komponente des ebenfalls aufgespaltenen X^- Übergangs detektiert. Es zeigt sich, dass bei Detektion der niederenergetischen σ^- Komponente eine Absorption nur in der niederenergetischen Komponente des angeregten Zustandes erfolgt. Ebenso erfolgt nur bei Anregung der oberen Komponente des angeregten Zustandes eine σ^+ Emission der höherenergetischen X^- Grundzustands-Komponente. Das Schema ist in der Mitte der Abb. 4.6 dargestellt, es erfolgt eine strikte Trennung zwischen den beiden Relaxationspfaden. Der Einfachheit halber wird die (kleine) Beimischung leichter Löcher im Grundzustand vernachlässigt und vollständig zirkular polarisierte Emission vom Grundzustand angenommen⁵.

Durch das externe Magnetfeld mit $B = 5$ T wird jedoch die Polarisierung des angeregten Lochzustandes nicht verändert, die angeregten Zustände bleiben linear polarisiert. Sowohl σ^+ als auch σ^- polarisierte Anregungs-Photonen werden hier absorbiert. Unabhängig davon erfolgt eine vollständig polarisierte Emission beim Zerfall des Trion-Grundzustandes. Das entsprechende PL-Spektrum ist im rechten Teil von Abb. 4.6 präsentiert. Die Spektren für σ^+ und σ^- Anregung sind dabei summiert dargestellt. Die Breite der Linien ist auflösungsbedingt (300 μeV). Lediglich die Wellenlänge der Anregung bestimmt die Zuordnung zu einem bestimmten Relaxationspfad und anschließender polarisierter Emission. Den unterschiedlichen Farben der einzelnen Spektren sind bestimmte Anregungsenergien zugeordnet, deren Position im Anregungsspektrum (linker Teil der Abb.) mit Pfeilen gleicher Farbe markiert ist. Mit Verschiebung der Anregung von der nieder- zur höherenergetischen Komponente des angeregten Zustandes verschiebt sich die Grundzustands-PL ebenfalls von der nieder- zur höherenergetischen Komponente. Lediglich ein geringer Anteil der entgegengesetzt polarisierten Komponente wird mitangeregt. Wie das PLE-Spektrum zeigt, kann dies mit dem endlichen Überlapp der Komponenten des angeregten Lochzustandes begründet werden.

Die Messergebnisse zeigen, dass der Prozess der optischen Orientierung des Spins des residenten Elektrons über die betrachteten angeregten Lochzustände möglich ist. Der Prozess ist in Abb. 4.7 für die Orientierungsrichtung

$$\left| +\frac{1}{2} \right\rangle \xrightarrow{\text{angeregter Lochzustand}} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle$$

⁵In Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen (siehe Abb. 4.2 a).

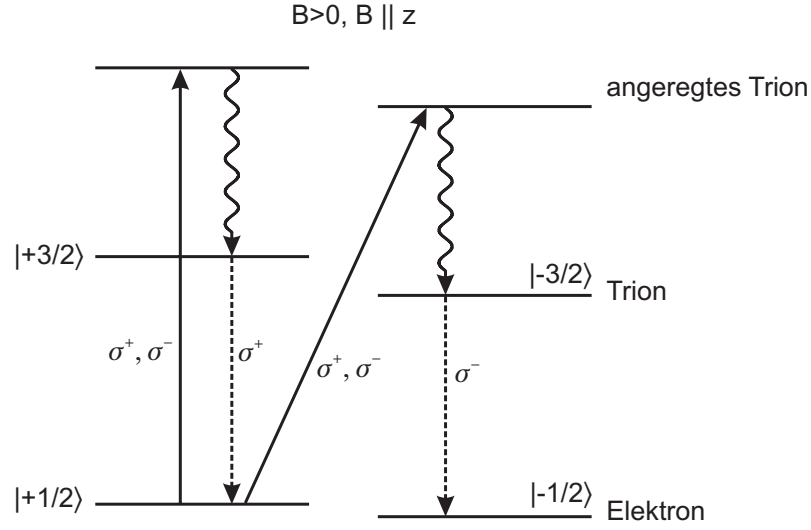


Abbildung 4.7: Schema der optischen Orientierung am angeregten Lochzustand: Anregung mit σ polarisiertem Licht erfolgt in beide Zustände, Relaxation erfolgt separat ohne Spinumklapp. Dargestellt ist die Spin-Orientierung des residenten Elektrons von $|\frac{1}{2}\rangle$ nach $|\frac{1}{2}\rangle$.

skizziert. Die geringe Energiedifferenz zwischen rechter und linker Seite von Abb. 4.7, gegeben durch die unterschiedlichen g -Faktoren, wird dabei vernachlässigt. Die Messungen im Magnetfeld zeigen weiter, dass die Separation der Relaxation nicht erst im Grundzustand erfolgt, sondern auch bei angeregten Löchern beibehalten wird. Bei Anregung mit z.B. σ^+ polarisierten Photonen in den angeregten Lochzustand erfolgt immer eine Absorption, weil dieser linear polarisiert ist. Im externen Magnetfeld entscheidet so die Energie der Anregung über den nachfolgenden Relaxationspfad: Bei resonanter Anregung in den höherenergetischen angeregten Lochzustand wird mit gewisser Wahrscheinlichkeit der Spin des residenten Elektrons von $+\frac{1}{2}$ nach $-\frac{1}{2}$ orientiert, bei niederenergetischer Anregung in den unteren Zweig des angeregten Lochzustandes erfolgt umgekehrt mit gewisser Wahrscheinlichkeit die Orientierung von $-\frac{1}{2}$ nach $+\frac{1}{2}$. Die Energiedifferenz zwischen den Ausgangszuständen $|\pm\frac{1}{2}\rangle$ des residenten Elektrons in Abb. 4.7 ist gegeben durch $g_e\mu_B B$. Bei $B = 5$ T ist diese Aufspaltung in derselben Größenordnung wie die Linienbreite. Dadurch ist eine eventuell vorhandene Signatur des Ausgangszustandes im jeweiligen Peak des Anregungsspektrums nicht zu separieren. Eine systematische Untersuchung der Magnetfeldabhängigkeit der Aufspaltung des angeregten Lochzustandes und der Linienbreiten wären hierfür erforderlich.

Über die Effizienz dieser Orientierung könnten in Nachfolge-Experimenten intensitätsabhängige bzw. zeitaufgelöste Messungen Auskunft geben. Die Effizienz wird beispielsweise beeinflusst durch die Spin-Lebensdauer des residenten Elektrons.

4.4 Geladene Biexzitonen

Neben der Emission, die von der Rekombination des Trion-Grundzustandes herrührt, lassen sich weitere Linien im PL-Spektrum mit geladenen Quantenpunkten assoziieren, die mit mehr als einem Trion besetzt sind. Diese Beobachtung ist analog zu neutralen Quantenpunkten, an denen sich neben der Rekombination des Exzitons auch jene von Multiexziton-Zuständen identifizieren und charakterisieren lassen [15].

In Abbildung 4.8 sind die charakteristischen PL-Daten geladener Quantenpunkte dargestellt. Die Elektron-Loch-Paare werden nichtresonant, oberhalb der Restschicht angeregt. Im linken Teil der Abbildung kann man sehen, dass für niedrige Anregungsintensitäten eine einzelne Linie (als X^- gekennzeichnet) auftritt, ganz so, wie es schon bei der Auswahl der Linien in Kap. 4.2 ausgenutzt und nach der Kramers-Entartung erwartet wird. Die PL-Intensität (Ausbeute) wächst bei kleinen Anregungen sublinear mit $I(X^-) \propto (I_{exc})^\alpha$ und $\alpha \approx 0.9$ zur Anregungsintensität und sättigt für große $I_{exc} > 1 \text{ kW/cm}^2$. Der Wert von α nahe eins deutet auf einen nur geringen Anteil nichtstrahlender Rekombinationen hin. Bei mittleren Anregungsdichten ($I_{exc} \approx 200 \text{ W/cm}^2$) erscheinen energetisch unterhalb von X^- weitere Linien im Spektrum, von denen zwei mit $XX_{1,2}^-$ bezeichnet sind und den Emissionen des geladenen Biexzitons zuzuordnen sind, wie im Folgenden gezeigt wird.

Zusätzlich erscheint im Spektrum dieses untersuchten Quantenpunktes dicht an X^- eine weitere, schwache Linie, die in Abb. 4.8 nicht bezeichnet ist. Die Anzahl und die relative Position solcher Linien variiert von QP zu QP. Es zeigt sich jedoch immer, dass die PL-Ausbeute dieser Linien schwächer sublinear mit I_{exc} wächst als X^- ; bei Anregung unterhalb der Energie der Benetzungsschicht ist die Intensität dieser Linien gegenüber der von X^- stark reduziert. Die zusätzlichen Linien werden der Rekombination von Trionen im Quantenpunkt zugeschrieben, gestört durch Kristalldefekte in der unmittelbaren Umgebung des Quantenpunkts, welche nach Zufallsprinzip elektrisch ge- und entladen werden [76] und damit ein elektrisches Feld erzeugen, das auf den Quantenpunkt einwirkt. Diese Emissionen sind hier nicht Gegenstand der Untersuchungen und werden deshalb im Folgenden nicht weiter betrachtet.

Die beiden Linien $XX_{1,2}^-$ hingegen wachsen superlinear mit der Anre-

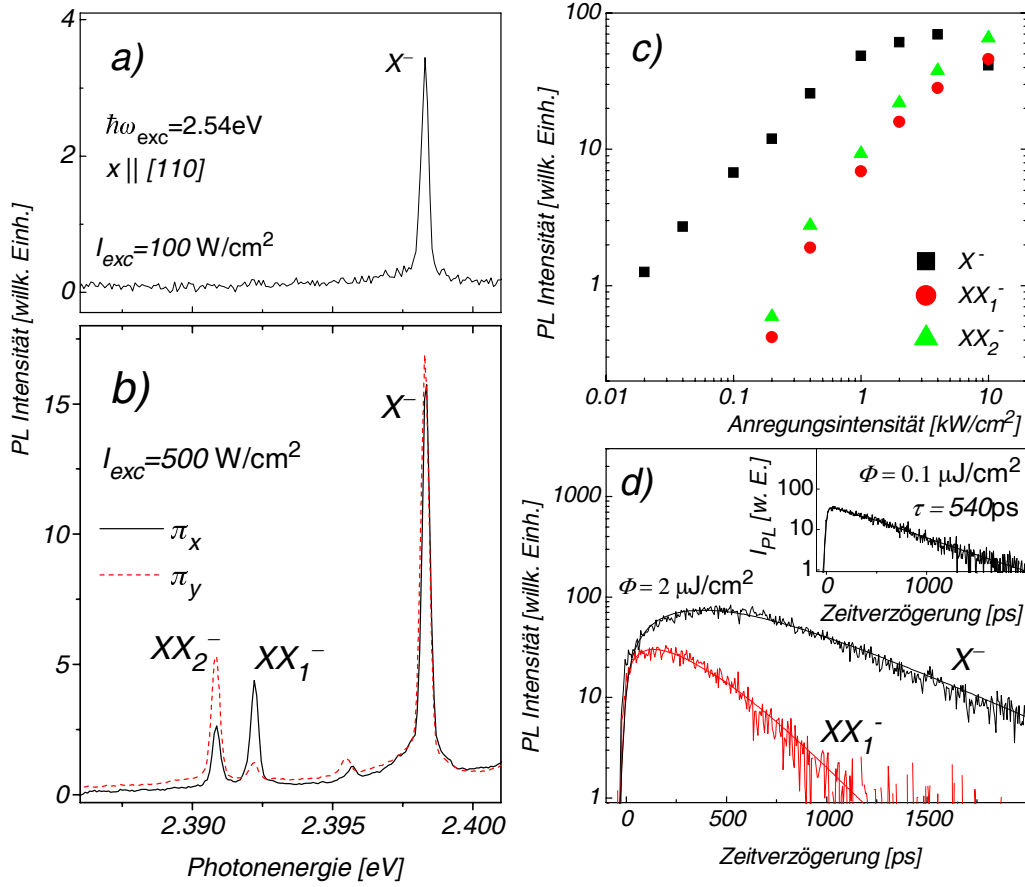


Abbildung 4.8: a) PL niedrige Anregungsintensität b) PL hohe Anregungsintensität für zwei unterschiedliche Polarisationsrichtungen der Detektion c) PL-Intensität vs. Anregungsintensität für X^- , $XX_{1,2}^-$ d) Zeitabhängige PL bei niedriger und hoher Anregungsintensität

gungsintensität, mit dem doppelten Exponenten von X^- , was auf die Beteiligung von zwei Elektron-Loch-Paaren hinweist (siehe Abb. 4.8 c). Systematisch für alle im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkte befindet sich das Linienpaar $XX_{1,2}^-$ zwischen 5 und 10 meV niederenergetisch der Emission von X^- , mit einer Energiedifferenz von $1.5 \pm 0.3 \text{ meV}$. Des weiteren erkennt man im Teilbild b) der Abbildung eine unvollständige lineare Polarisation der Emission von $XX_{1,2}^-$.

Zeitaufgelöste Untersuchungen, dargestellt in Abb. 4.8 d), zeigen einen kaskadierten Zerfall von X^- und $XX_{1,2}^-$, was ebenfalls für die Identifikation mit dem Zerfall des geladenen Biexzitons spricht. Details zum Messaufbau finden sich in [77]. Bei schwacher Anregung ($\Phi = 0.1 \text{ } \mu\text{J/cm}^2$ pro Anre-

gungspuls) sind die Emissionslinien $XX_{1,2}^-$ abwesend und die Emission des Trions X^- zerfällt einfach exponentiell mit einer Lebensdauer von $\tau_1 = 540$ ps (siehe Inset). Dagegen kommt es zu einer sichtbaren Verzögerung des Trionzerfalls bei intensiverer Anregung $\Phi = 2\mu\text{J}/\text{cm}^2$, während die Signale für $XX_{1,2}^-$ nahezu sofort erscheinen und beide mit der Lebensdauer $\tau_2 = 250$ ps zerfallen. Aus einem zweifach-exponentiellen Fit des Trionzerfalls kann eine Anstiegszeit von 280 ps und eine Zerfallszeit von 540 ps ermittelt werden. Der Anstieg der Emission von X^- erfolgt nahezu mit derselben Zeitkonstante wie der Zerfall der Linien $XX_{1,2}^-$. Dies weist klar auf einen kaskadierten Zerfall hin, wobei die niederenergetischen Linien $XX_{1,2}^-$ zuerst zerfallen. Zusammen mit der Intensitätsabhängigkeit kann daher das Linienpaar $XX_{1,2}^-$ der strahlenden Rekombination des geladenen Biexzitons zugeordnet werden. Dies wird, wie im nächsten Kapitel beschrieben, zur Präparation des Trion-Triplettzustandes benutzt.

4.5 Triplettzustand des Trions

Wie im Folgenden gezeigt wird, führt die Elektron-Loch Austauschwechselwirkung im angeregten Trionzustand zu polarisierter Emission. Damit diese nicht durch die oben diskutierte Leichtloch-Schwerloch-Kopplung beeinflusst wird, werden für die folgenden Untersuchungen nur sehr symmetrische QP ausgewählt.

Im Grundzustand des Trions besetzen die beiden Elektronen die niedrigste Schale, ihre Spins kompensieren sich. Zur Untersuchung von Austauschwechselwirkungen zwischen Elektron und Loch in einfach geladenen QP eignen sich deshalb nur angeregte Trionenzustände, in denen die beiden Elektronen unterschiedliche Einteilchen-Schalen besetzen. Im Falle der Anregung $1e^12e^11h^1$ besetzt eines der beiden Elektronen die zweitniedrigste Energieschale, das andere Elektron und das Loch befinden sich jeweils im tiefsten Einteilchen-Zustand.

Dieser angeregte Zustand kann nicht direkt durch PL beobachtet werden, da eine schnelle Relaxation des angeregten Elektrons von $2e$ nach $1e$ erfolgt. In Übereinstimmung dazu lassen sich aus hochaufgelösten Spektren Linienbreiten von $XX_{1,2}^-$ von $\Gamma \approx 400$ μeV und daraus Lebensdauern von 4 ps abschätzen. Die Präparation des angeregten Trion-Zustandes erfolgt über den Zerfall des geladenen Biexzitons, wie die Abb. 4.9 zeigt. Dabei bleibt ein angeregtes Trion zurück. Wie schon in Kapitel 2.2.2 beschrieben, besteht das geladene Biexziton ($1e^22e^11h^2$) aus einer jeweils doppelt besetzten untersten Schale für Elektron und Loch und dem dritten Elektron in der zweiten Schale. Wie in der Abb. 4.9 weiter skizziert, ist es am wahrschein-

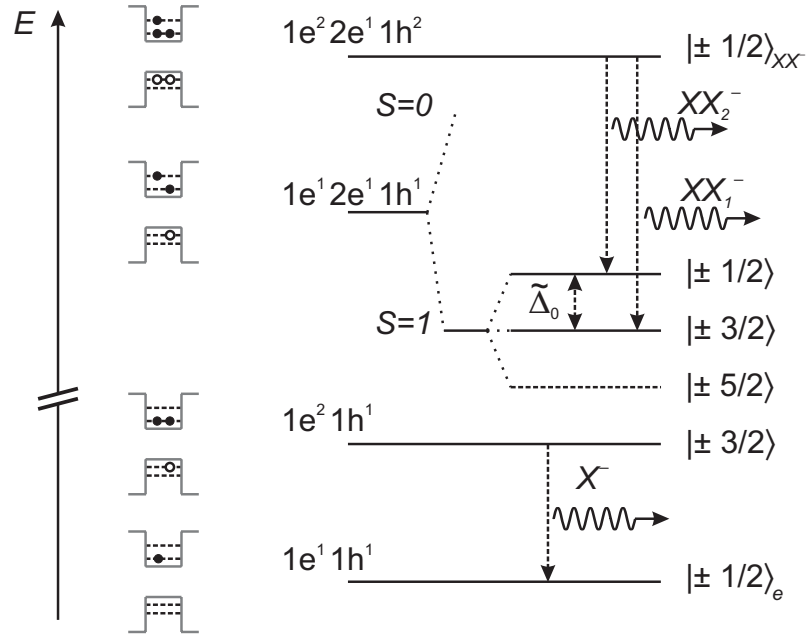


Abbildung 4.9: Energieschema zur Präparation eines Trion-Zustandes mit angeregtem Elektron durch den Zerfall eines geladenen Biexzitons, anisotroper $e - h$ Austausch ist nicht berücksichtigt. Die Rekombination in den Trion-Triplettzustand liefert die optischen Übergänge $XX_{1,2}^-$ aufgrund von dessen Feinstruktur. Die Besetzung des Quantenpunktes zum jeweiligen Zustand ist mit angegeben.

lichsten, dass beim Zerfall eines geladenen Biexzitons ein Elektron aus der untersten Schale mit einem Loch rekombiniert, weil beide jeweils die unterste Einteilchen-Energieschale besetzen. Eine Rekombination von Elektron und Loch aus unterschiedlichen Schalen ist unterdrückt wegen der unterschiedlichen Parität der Einhüllenden.

Nach der Rekombination von Elektron und Loch aus ihrem jeweiligen tiefsten Niveau bleibt ein angeregter Trionzustand mit einem Elektron in der zweiten Schale zurück. Die beiden Linien $XX_{1,2}^-$ in Abb. 4.8 stammen daher aus dem Zerfall des geladenen Biexzitons. Der Endzustand ist ein angeregtes Trion. Das Auftreten von *zwei* Linien erklärt sich aus der Feinstruktur des angeregten Trions.

Der Spin-Anteil der Wellenfunktion des Trions wird dargestellt durch $|F_z\rangle = |J_z\rangle |S, S_z\rangle$, wobei die gute Quantenzahl⁶ F_z sowie J_z und S_z die Projektion des Gesamtdrehimpulses, des Lochspins sowie des Elektron-Gesamt-

⁶in Abwesenheit von Schwerloch-Leichtloch-Kopplung

spins auf die z -Achse bezeichnen [78]. Sie umfasst bei einem Trion mit einem Elektron in der nächsthöheren Schale acht Zustände. Diese Konfiguration lässt sich gruppieren zu einem Singulett- $|\pm\frac{3}{2}\rangle = |\pm\frac{3}{2}\rangle|0,0\rangle$ und einem Triplettzustand ($S = 1$). Letzterer umfasst drei Spinkonfigurationen $|\pm\frac{1}{2}\rangle = |\pm\frac{3}{2}\rangle|1,\mp 1\rangle$, $|\pm\frac{3}{2}\rangle = |\pm\frac{3}{2}\rangle|1,0\rangle$ und $|\pm\frac{5}{2}\rangle = |\pm\frac{3}{2}\rangle|1,\pm 1\rangle$. Die charakteristische Feinstruktur ist in Abb. 4.9 skizziert. Sie wird hervorgerufen durch die Austauschwechselwirkungen zwischen den drei Teilchen, die sich nun nicht mehr kompensieren und so die achtfache Entartung teilweise aufheben.

Der Triplettzustand ist gegenüber dem Singulett energetisch bevorzugt, weil der Singulett-Zustand aufgrund der Elektron-Elektron Wechselwirkung ins Hochenergetische verschoben ist. Eine Abschätzung für die Energiedifferenz liefert eine Größenordnung von $0.25 E_{\text{Ryd}} \approx 20 \text{ meV}$ [79, 80]. Daher können die beiden Linien XX_1^- und XX_2^- nicht durch die Singulett-Triplett-Aufspaltung hervorgerufen werden. Vielmehr wird die Aufspaltung durch die Elektron-Loch Austauschwechselwirkung verursacht. Diese lässt sich unterscheiden in einen isotropen Anteil, der eine energetische Aufspaltung des Triplets bewirkt und einen anisotropen Anteil, der die Zustände mischt und damit die Polarisationsseigenschaften der optischen Übergänge bestimmt.

Wie oben beschrieben, ist der Gesamtspin des geladenen Biexzitons gegeben durch das ungepaarte Elektron in der zweiten Schale. Sowohl die Drehimpulse der beiden Löcher als auch die Spins der beiden Elektronen in der jeweils niedrigsten Schale kompensieren sich gemäß Pauli-Prinzip. Der Zustand $|\pm 1/2\rangle_{XX^-}$ des geladenen Biexzitons ist daher zweifach entartet. Optisch erlaubt sind Übergänge zum Triplettzustand des angeregten Trions mit $|\pm 3/2\rangle$ und $|\pm 1/2\rangle$. Übergänge zu $|\pm 5/2\rangle$ sind optisch inaktiv. Erwartungsgemäß finden sich im Spektrum der Abb. 4.8 b) zwei und nicht drei Linien. Der Energieabstand von $1.5 \pm 0.3 \text{ meV}$, gemittelt aus der Messung von ca. 20 Spektren, stimmt gut mit dem am Exziton aus ungeladenen QP gemessenen Wert von 1.9 meV für die isotrope Austauschwechselwirkung überein [26]. Im Folgenden werden beide Anteile, isotrop und anisotrop, näher quantifiziert.

4.5.1 Anisotrope Austauschwechselwirkung

Zur Beschreibung des Triplettzustand mit Elektron-Loch Austauschwechselwirkung und ohne externes Magnetfeld kann der Hamiltonoperator des Systems wie folgt aufgeschrieben werden. Basis sind die schon eingeführten Zustände mit Spinprojektionen entlang der z -Achse $|F_z\rangle = |\pm 1/2\rangle, |\pm 3/2\rangle$ und

$|\pm 5/2\rangle$:

$$\mathcal{H}_{EHX} = \begin{pmatrix} \tilde{\Delta}_0 & 0 & 0 & \tilde{\Delta}_1/\sqrt{2} & 0 & 0 \\ 0 & \tilde{\Delta}_0 & \tilde{\Delta}_1/\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \tilde{\Delta}_1/\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & \tilde{\Delta}_2/\sqrt{2} \\ \tilde{\Delta}_1/\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & \tilde{\Delta}_2/\sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \tilde{\Delta}_2/\sqrt{2} & -\tilde{\Delta}_0 & 0 \\ 0 & 0 & \tilde{\Delta}_2/\sqrt{2} & 0 & 0 & -\tilde{\Delta}_0 \end{pmatrix}. \quad (4.11)$$

Hierbei bezeichnet $\tilde{\Delta}_i = (\Delta_i^1 + \Delta_i^2)/2$, ($i = 0, 1, 2$) mit dem oberen Index 1, 2 für das erste bzw. das zweite Elektron dessen Austauschenergie mit dem Loch. Mit Δ_0 , Δ_1 , Δ_2 ist die in Kap. 2.2 eingeführte isotrope bzw. anisotrope Elektron-Loch Austauschwechselwirkung bezeichnet.

Der Diagonalanteil von (4.11) ist für die Aufspaltung zwischen den Doublets verantwortlich, während nichtdiagonale Anteile zu einer Mischung der reinen F_z Zustände führen. Beim Vergleich mit dem Exziton im ungeladenen QP führt der Parameter Δ_1 zu einer Mischung von Zuständen mit $\Delta F_z = \pm 2$ und Δ_2 zu einer Mischung von Zuständen mit $\Delta F_z = \pm 4$. Entsprechend übertragen koppeln im Triplettzustand des angeregten Trions die Zustände $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ mit $|\mp \frac{1}{2}\rangle$ und $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ mit $|\mp \frac{5}{2}\rangle$. Letztere wird durch relativistische Korrekturen des Leitungsbandes nahe des Γ -Punktes hervorgerufen und ist sehr klein. Im neutralen QP sorgt Δ_2 für eine Aufspaltung des dunklen Exziton-Doublets mit $J_{X,z} = \pm 2$. Sowohl Theorie [25] als auch Experiment [26] liefern Werte in der Größenordnung weniger μeV , so dass im Folgenden Δ_2 mit gutem Gewissen vernachlässigt werden kann.

Wie im Folgenden gezeigt wird, führt die anisotrope Austauschwechselwirkung zu drastischen Veränderungen der Polarisationsseigenschaften sowie der magnetischen Eigenschaften.

Der für den Zerfall der geladenen Biexzitons relevante Anteil der Wellenfunktionen kann folgendermaßen geschrieben werden:

$$\begin{aligned} \left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle_{XX^-} \propto \left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle_{e_2} & \left(\left| +\frac{1}{2} \right\rangle_e \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_{e_1} - \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_e \left| +\frac{1}{2} \right\rangle_{e_1} \right) \\ & \times \left(\left| +\frac{3}{2} \right\rangle_h \left| -\frac{3}{2} \right\rangle_{h_1} - \left| -\frac{3}{2} \right\rangle_h \left| +\frac{3}{2} \right\rangle_{h_1} \right), \quad (4.12) \end{aligned}$$

wobei e und h das rekombinierende Elektron-Loch-Paar bezeichnen, und e_1 , e_2 und h_1 sich auf die Teilchenindices im verbleibenden Trion-Endzustand beziehen. Die sechs möglichen Endzustände des angeregten Trions im Triplettzustand lassen sich wie folgt ausdrücken; der Index \tilde{X}^- ist zur besseren

Kennzeichnung des Triplettzustandes hinzugefügt:

$$\begin{aligned}
\left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle_{\widetilde{X}^-} &= \left| \mp \frac{1}{2} \right\rangle_{e_1} \left| \mp \frac{1}{2} \right\rangle_{e_2} \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle_{h_1}, \\
\left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle_{\widetilde{X}^-} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| +\frac{1}{2} \right\rangle_{e_1} \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_{e_2} - \left| -\frac{1}{2} \right\rangle_{e_1} \left| +\frac{1}{2} \right\rangle_{e_2} \right) \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle_{h_1}, \\
\left| \pm \frac{5}{2} \right\rangle_{\widetilde{X}^-} &= \left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle_{e_1} \left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle_{e_2} \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle_{h_1}.
\end{aligned} \tag{4.13}$$

Wenn im QP D_{2d} -Symmetrie vorliegt, ist der anisotrope Anteil Δ_1 der Austauschwechselwirkung abwesend und die einzige nicht-diagonale Kopplung im Hamiltonian (4.11) wird durch das vernachlässigbar kleine Δ_2 hervorgerufen. Ein Vergleich der Formeln (4.12) und (4.13) führt zu Regeln für den Übergang vom geladenen Biexziton in den Triplettzustand des angeregten Trions. Sie sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst.

	$-\frac{5}{2}$	$-\frac{3}{2}$	$-\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2}$	$+\frac{3}{2}$	$+\frac{5}{2}$	\widetilde{X}^-
$+\frac{1}{2}$	σ^+				$\frac{1}{2}\sigma^-$		
$-\frac{1}{2}$		$\frac{1}{2}\sigma^+$		σ^-			

Tabelle 4.1: Polarisations-Auswahlregeln des Photon-Drehimpulses für den Übergang vom geladenen Biexziton zum Triplettzustand des angeregten Trions.

Vom Anfangszustand $\left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle_{XX^-}$ ist die Oszillatorstärke des Übergangs in den Endzustand $\left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle$ nur halb so groß wie in den Endzustand $\left| \pm \frac{1}{2} \right\rangle$. Dies wird verursacht durch die Wellenfunktion von $\left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle$, nur die Hälfte führt zu einem optisch erlaubten Übergang, bei der anderen Hälfte stehen die Spinprojektionen vom Elektron in der untersten Schale und vom Loch parallel. Bei rein isotroper Austauschwechselwirkung wäre die Linie XX_2^- daher doppelt so intensiv wie die Linie XX_1^- . Es gibt keinen Dipol-erlaubten Übergang vom geladenen Biexziton zu einem Triplett-Endzustand $\left| \pm \frac{5}{2} \right\rangle$ im angeregten Trion. In voller Bestätigung der aufgestellten Regeln findet sich kein entsprechender Übergang im PL-Spektrum. Dies stellt gleichzeitig eine zusätzliche Überprüfung dar: zum einen für die geringe Kopplung zwischen leichten und schweren Löchern, zum anderen für einen vernachlässigbar kleinen Wert $\Delta_2 \approx 0$. Anderenfalls wäre in beiden Fällen der Übergang nach $\left| \pm \frac{5}{2} \right\rangle$ durch Mischung der Zustände optisch erlaubt und eine Emissionslinie im Spektrum (siehe Abb. 4.8) beobachtbar.

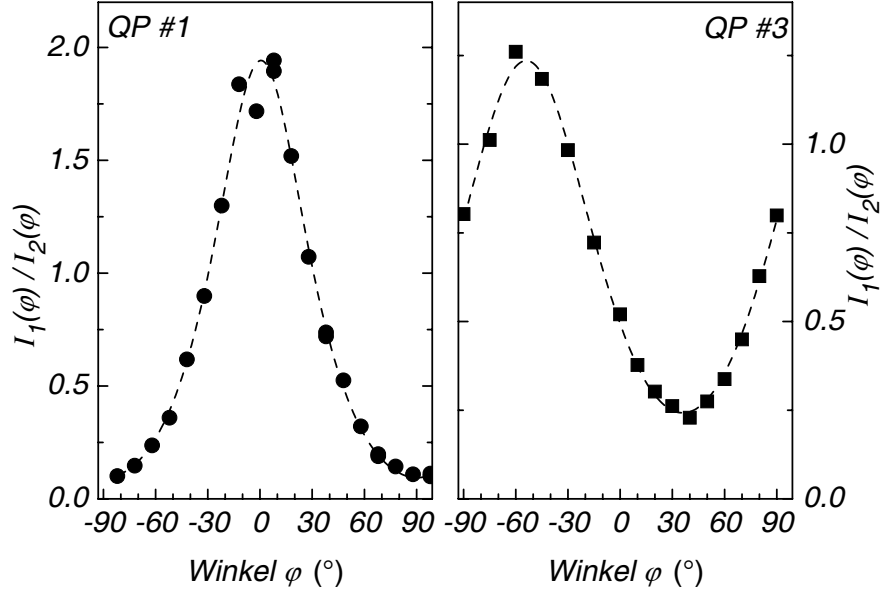


Abbildung 4.10: Intensitätsverhältnis $I(XX_1^-)/I(XX_2^-)$ in Abhängigkeit vom Winkel zwischen Detektionsrichtung und der Kristallachse [110].

Mit der linear polarisierten Anregung werden beide Zustände $|\pm\frac{1}{2}\rangle_{XX^-}$ des geladenen Biexzitons mit gleicher Wahrscheinlichkeit angeregt. Beim Zerfall in die reinen Zustände aus Gl. (4.13) wären die Übergänge zum Triplettzustand des angeregten Trions unpolarisiert. Dagegen zeigt schon das Spektrum 4.8, dass die Linien $XX_{1,2}^-$ polarisiert sind und eine bevorzugte Polarisationsrichtung besitzen. Dies ist eine Folge der anisotropen Austauschwechselwirkung, die zu einer Mischung der beiden Zustände $|\pm\frac{1}{2}\rangle$ und $|\pm\frac{3}{2}\rangle$ aus Gl. (4.13) führt.

In Abb. 4.10 ist mit $R(\varphi) = I_1(\varphi)/I_2(\varphi)$ und $I_j = I(XX_j^-)$ die Winkelabhängigkeit des Verhältnisses der Linienintensitäten aufgetragen. Der Winkel φ ist wie bisher definiert als Winkel zwischen dem Analysator und der Kristallachse [110]. Die detaillierte Analyse zeigt, dass die Polarisationsrichtungen von XX_1^- und XX_2^- senkrecht aufeinander stehen. Meist stimmen sie mit den Kristallachsen überein, d.h. $\vartheta = n\frac{\pi}{2}$ mit $n \in \mathbb{N}$. Wie die Abb. zeigt, gibt es aber auch Fälle mit $\vartheta = \frac{\pi}{3}$.

Für das Verhältnis der beiden Linien $XX_{1,2}^-$ mit jeweils linear teilpolarisiertem Licht ergibt sich gemäß Gleichung (4.3)

$$R(\varphi) = R_0 \frac{1 + \rho_{L1}^0 \cos(2(\varphi - \vartheta))}{1 - \rho_{L2}^0 \cos(2(\varphi - \vartheta))}. \quad (4.14)$$

Hierbei ist $R_0 = I_{01}/I_{02}$ das Verhältnis der mittleren Intensitäten, und ρ_{L1}

bzw. ρ_{L2} sind die linearen Polarisationsgrade der Linien XX_1^- bzw. XX_2^- . Ein Fit der Messdaten aus Abb. 4.10 liefert

$$\begin{array}{llll} \text{QP\#1:} & R_0 = 0.55, & \rho_{L1} = 0.74, & \rho_{L2} = 0.51, \\ \text{QP\#3:} & R_0 = 0.59, & \rho_{L1} = 0.75, & \rho_{L2} = 0.44. \end{array}$$

In beiden Fällen liegt der Wert von R_0 nahe bei dem theoretischen Wert (bei Abwesenheit einer Kopplung) von $\frac{1}{2}$ aus Tabelle 4.1. Der endliche Wert der linearen Polarisation weist jedoch direkt auf eine Kopplung aufgrund der Nicht-Diagonalelemente im Hamiltonian hin. Falls, wie angenommen, Δ_2 sehr klein und infolgedessen die Kopplung zwischen den Zuständen $|\pm\frac{5}{2}\rangle$ und $|\pm\frac{3}{2}\rangle$ vernachlässigbar ist, kann der Hamiltonian (4.11) als 2×2 Matrix geschrieben werden. Zu dessen Eigenenergien

$$E_{1,2} = \frac{1}{2} \left(\tilde{\Delta}_0 \mp \sqrt{(\tilde{\Delta}_0)^2 + 2(\tilde{\Delta}_1)^2} \right) \quad (4.15)$$

gehören die Eigenvektoren $\phi_{1,2}^\pm$, die sich aus den ungekoppelten Triplettzuständen wie folgt zusammensetzen:

$$\begin{aligned} \phi_1^\pm &= \cos(\alpha) \left| \pm\frac{3}{2} \right\rangle - \sin(\alpha) \left| \mp\frac{1}{2} \right\rangle \\ \phi_2^\pm &= \cos(\alpha) \left| \pm\frac{1}{2} \right\rangle + \sin(\alpha) \left| \mp\frac{3}{2} \right\rangle \end{aligned} \quad (4.16)$$

Hierbei ist der Parameter α definiert über

$$\alpha = \frac{1}{2} \arctan \left(\sqrt{2} \frac{\tilde{\Delta}_1}{\tilde{\Delta}_0} \right). \quad (4.17)$$

Die optischen Übergänge, die mit diesen Zuständen assoziiert sind, sind elliptisch polarisiert. Gemäß der Übergänge aus Tabelle 4.1 überlagern sich die zirkular polarisierten Übergänge der reinen Zustände zu einer teilweisen linearen Polarisation. Die Linien $XX_{1,2}^-$ aus dem PL-Spektrum aus dem Zerfall des geladenen Biexzitons in $\phi_{1,2}^\pm$ werden durch die folgende Parameter charakterisiert:

$$\rho_{L1} = 2\sqrt{2} \frac{\chi}{1 + 2\chi^2}, \quad \rho_{L2} = 2\sqrt{2} \frac{\chi}{2 + \chi^2}, \quad R_0 = \frac{1 + 2\chi^2}{2 + \chi^2}, \quad (4.18)$$

hierbei ist $\chi = \sqrt{2}\tilde{\Delta}_1 / \left[\tilde{\Delta}_0 + \sqrt{\tilde{\Delta}_0^2 + 2\tilde{\Delta}_1^2} \right]$. Der Faktor $\frac{1}{2}$ zwischen den optischen Übergangswahrscheinlichkeiten in die reinen $|\pm\frac{1}{2}\rangle$ bzw. $|\pm\frac{3}{2}\rangle$ Zustände

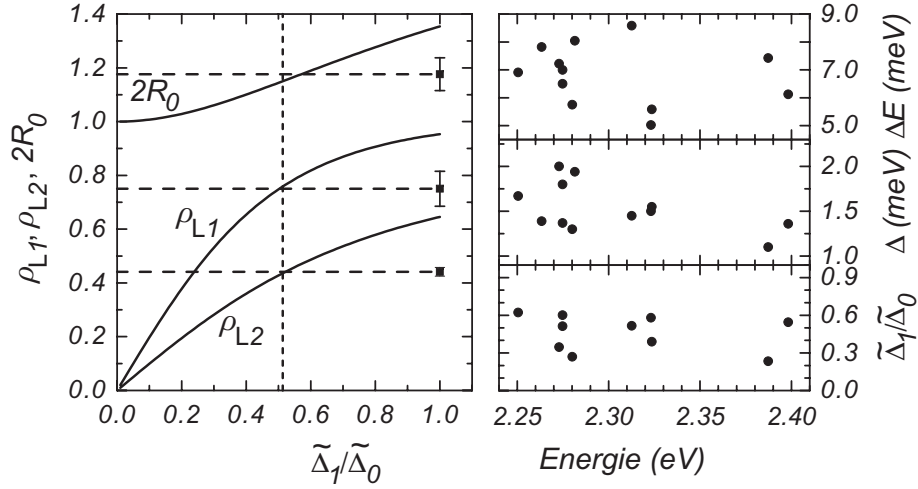


Abbildung 4.11: Links: Die linearen Polarisationsgrade ρ_{L1} und ρ_{L2} sowie das Intensitätsverhältnis R_0 dargestellt in Abhängigkeit von $\tilde{\Delta}_1/\tilde{\Delta}_0$ gemäß Gl. (4.18). Gestrichelte Linien gelten für QP #2. Rechts: Ergebnisse der Analyse von 12 QP aus mehreren Proben.

sorgt demnach nicht nur für den Wert R_0 , sondern manifestiert sich in der größeren linearen Polarisation der Linie XX_1^- im Vergleich zur Linie XX_2^- . In voller Übereinstimmung dazu bestätigen dies die Ergebnisse, dargestellt in den Abb. 4.8 und 4.10.

Die Größen ρ_{L1} , ρ_{L2} und R_0 sind Funktionen von $\tilde{\Delta}_1/\tilde{\Delta}_0$. Ihr Verlauf ist in Abb. 4.11 links dargestellt. Ein Vergleich mit den experimentellen Werten für QP #2 aus Abb. 4.10 liefert das Verhältnis zwischen anisotroper und isotroper Austauschwechselwirkung im trionischen Triplettzustand. Die entsprechenden Werte sind in Abb. 4.11 (links) eingetragen und liefern

$$\tilde{\Delta}_1/\tilde{\Delta}_0 = 0.51.$$

Dieser überraschend hohe Wert wird durch eine systematische Untersuchung an weiteren Quantenpunkten bestätigt. Im rechten Teil der Abb. 4.11 ist eine statistische Auswertung der Spektren mehrerer Trionen dargestellt. Das Verhältnis $\tilde{\Delta}_1/\tilde{\Delta}_0$ zwischen isotroper und anisotroper Austauschwechselwirkung wird dabei jeweils bestimmt wie oben beschrieben. ΔE beschreibt die Energiedifferenz zwischen den Linien X^- und XX_1^- . Mit $\tilde{\Delta} = E_1 - E_2$ ist die Energieaufspaltung zwischen den beiden Linien XX_1^- und XX_2^- bezeichnet. Es lässt sich keine Korrelation der Parameter untereinander erkennen, ebenso wenig wie eine Abhängigkeit von der Energie des Grundzustandes des Trions. Daraus kann geschlossen werden, dass die lokalen Begebenheiten (Verspannung, Potential) eines QP starken Einfluss auf seine individuelle elektronische

Struktur haben. In ΔE sind die Coulombenergien des Trions bzw. des geladenen Biexzitons enthalten. Die Energien des Trion-Grundzustandes (Singulett), des Triplettzustandes sowie der Zustand des geladenen Biexzitons können mit Hilfe der Einteilchen-Energien E_{np} dargestellt werden:

$$\begin{aligned} E_{X-}^S &= 2E_{1e} + E_{1h} + W_{X-}^S \\ E_{X-}^T &= E_{1e} + E_{2e} + E_{1h} + W_{X-}^T \\ E_{XX-} &= 2E_{1e} + E_{2e} + 2E_{1h} + W_{XX-}, \end{aligned} \quad (4.19)$$

wobei E_{np} die Einteilchenenergie des Elektrons ($p = e$) bzw. des Lochs ($p = h$) in der n -ten Schale bezeichnet ⁷. In W sind die spezifischen Coulomb-Wechselwirkungen zusammengefasst. Gemäß dem Zerfallsschema des geladenen Biexzitons lässt sich ΔE darstellen als

$$\Delta E = E_{X-}^S + E_{X-}^T - E_{XX-} - E_{1e} = W_{X-}^S + W_{X-}^T - W_{XX-}. \quad (4.20)$$

Da hierbei nur Energiedifferenzen eine Rolle spielen, wird im Folgenden die Energie des residenten Elektrons im QP, E_{1e} , zu Null festgelegt. Im Gegensatz zum Biexziton im neutralen Quantenpunkt enthält ΔE auch Elektron-Elektron Austauschterme aus unterschiedlichen Schalen. Ein positiver Wert für ΔE bedeutet wegen $W_{XX-} < W_{X-}^T + W_{X-}^S$, dass die Anziehung der Teilchen im geladenen Biexziton stärker ist als die Summe der Anziehungsenergien vom Grundzustand und Triplettzustand.

Die Mittelung der Werte aus Abb. 4.11 rechts liefert

$$\tilde{\Delta} = (1.5 \pm 0.3), \quad \tilde{\Delta}_1/\tilde{\Delta}_0 = 0.48 \pm 0.14. \quad (4.21)$$

Aus diesen Werten lässt sich mit der Beziehung

$$\tilde{\Delta}_0 = (\Delta_0^1 + \Delta_0^2)/2 = \tilde{\Delta}/\sqrt{1 + 2(\tilde{\Delta}_1/\tilde{\Delta}_0)^2} \quad (4.22)$$

die Austauschenergie des Lochs mit dem Elektron in der zweiten Schale ausrechnen. Die Werte sind in Tabelle 4.2 zusammengefasst, dabei werden Ergebnisse aus [26] benutzt.

Für die Elektron-Loch Austauschwechselwirkung erhält man unterschiedliche Werte, je nachdem, welche Schale das teilnehmende Elektron besetzt. Der isotrope Austausch $1e - 1h$ ist $\Delta_0^1 = 1.9$ meV nach [26]; ist dagegen das Elektron in der zweiten Schale, ergibt sich $\Delta_0^2 = 0.6$ meV. Dass dieser Wert für $2e - 1h$ kleiner ist als der isotrope Austausch zwischen gleichen Schalen, lässt sich nachvollziehen, da im Allgemeinen die Coulomb-Wechselwirkung

⁷Für die unterste Schale gilt nach wie vor $n = 1$

j	Δ_j^1 (meV)	Δ_j^2 (meV)	$\widetilde{\Delta}_j$ (meV)
0	1.9	0.6	1.3
1	0.2	0.9	0.6

Tabelle 4.2: Werte der isotropen ($j = 0$) und anisotropen ($j = 1$) Elektron-Loch Austauschenergien. Der obere Index bezeichnet die Wechselwirkung des Elektrons in der ersten bzw. zweiten Schale mit dem Loch. Die Werte für Δ_j^1 sind [26] entnommen. Die Gesamt-Austauschenergie im angeregten Triplettzustand ist $\widetilde{\Delta}_j = (\Delta_j^1 + \Delta_j^2)/2$.

zwischen der zweiten Elektron- und der ersten Lochschale kleiner ist als zwischen beiden Teilchen in der ersten Schale. Grund hierfür kann z.B. die unterschiedliche Parität der Einhüllenden sein oder die unterschiedlich starke Lokalisation der Wellenfunktionen. Der gleiche Trend wird für III-V Quantenpunkte berichtet [81]. Dagegen ist für den anisotropen Austausch der Anteil des Elektrons in der zweiten Schale sogar größer als für $1e - 1h$. Die Ursache dieser Erhöhung hängt wahrscheinlich mit der p -Symmetrie der Einhüllenden Wellenfunktion der $2e$ Schale zusammen. Mit p -Symmetrie ist die Einhüllende stärker lateral ausgedehnt, also wird eine Anisotropie des Quantenpunkts einen stärkeren Einfluss haben als bei einem Elektron der untersten Schale mit s -symmetrischer Einhüllenden.

4.5.2 Angeregtes Trion im externen Magnetfeld

Die Austauschwechselwirkung im Triplettzustand zeigt auch in einem externen Magnetfeld bedeutende Auswirkungen. Abb. 4.12 zeigt das Verhalten der drei Linien X^- und $XX_{1,2}^-$ in einem externen Magnetfeld in Faraday-Geometrie. Neben der schon aus Kapitel 2.2.2 bekannten Aufspaltung des Grundzustandes spalten auch die Übergänge vom geladenen Biexziton jeweils zweifach auf. Für die beiden Linie XX_1^- und XX_2^- sind bei $B = 0$ Anfangs- und Endzustand jeweils zweifach entartet, von den vier möglichen Kombinationen sind jeweils zwei Dipol-erlaubt und zwei Dipol-verboten. Im dargestellten Schema in der Abbildung 4.12 links ist zunächst die anisotrope $e - h$ Austauschwechselwirkung nicht berücksichtigt ($\widetilde{\Delta}_1 = 0$). Die Verschiebung der einzelnen Linien ist vom jeweiligen g -Faktor abhängig.

Im rechten Teil der Abbildung ist die zugehörige PL dargestellt. Deutlich ist die jeweils zweifache Aufspaltung der drei Linien X^- und $XX_{1,2}^-$ zu erkennen. Ohne anisotrope $e - h$ Austauschwechselwirkung wären, wie links eingezeichnet, alle vier Übergänge zirkular polarisiert. Die gemessene Polarisierung der Linien weist dagegen bereits auf einen starken Einfluss der

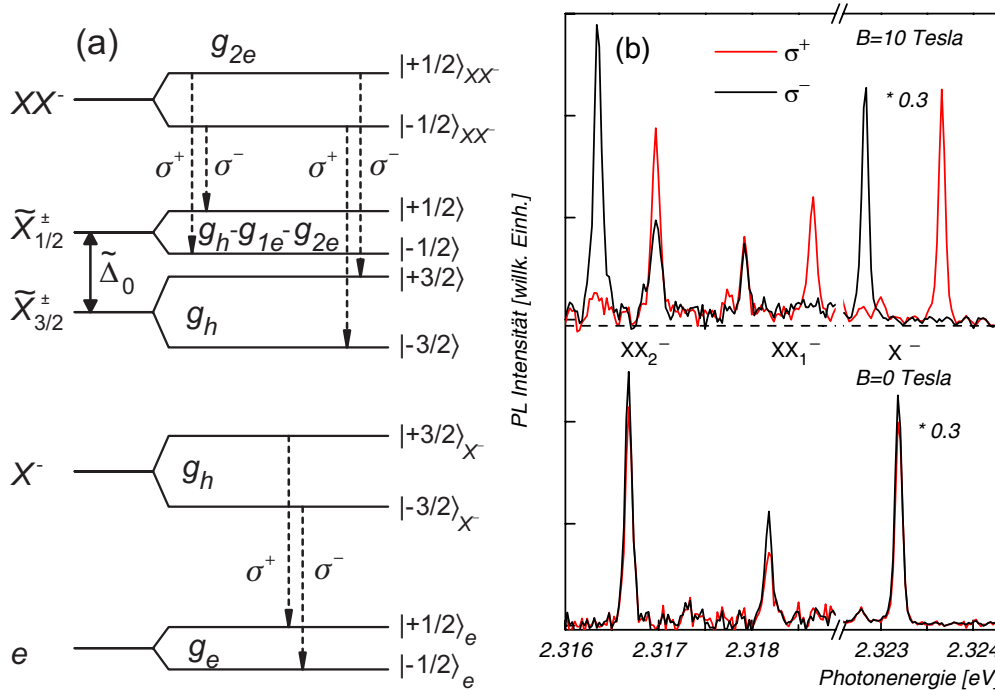


Abbildung 4.12: (a) Schema der Übergänge X^- sowie $XX_{1,2}^-$ in einem externen longitudinalen Magnetfeld ($\tilde{\Delta}_1 = 0$). Die Kramers-Entartung wird aufgehoben. (b) Polarisationsaufgelöstes PL-Spektrum von X^- und $XX_{1,2}^-$, mit und ohne externes longitudinales Magnetfeld. Die Emission von X^- ist zum besseren Vergleich skaliert dargestellt.

anisotropen $e - h$ Austauschwechselwirkung hin. Während die Emission aus dem Trion-Grundzustand bei $B = 10$ T nahezu vollständig zirkular polarisierte Übergänge zeigt, ist die Situation für die Linien $XX_{1,2}$ komplizierter. Lediglich die äußeren beiden Linien vom geladenen Biexziton zu den Triplettzuständen: $|-1/2\rangle_{XX^-} \rightarrow |-3/2\rangle$ und $|-1/2\rangle_{XX^-} \rightarrow |+1/2\rangle$ sind annähernd vollständig zirkular polarisiert. Die inneren beiden Linien $|+1/2\rangle_{XX^-} \rightarrow |+3/2\rangle$ und $|+1/2\rangle_{XX^-} \rightarrow |-1/2\rangle$ zeigen dagegen bei $B = 10$ T keine vollständige zirkulare Polarisation. Die anisotrope $e - h$ Austauschwechselwirkung führt zu einer Kopplung der Zustände wie in (4.16). Diese ist gemäß dem Hamiltonian (4.11) abhängig vom Energieabstand der beteiligten Triplettzustände. Deshalb zeigen bei $B = 10$ T die beiden äußeren Linien eine schwächere lineare Polarisation als die beiden inneren Linien.

Die energetische Aufspaltung für den Zerfall des Trion-Grundzustandes ist gegeben durch den g -Faktor vom Loch und vom verbleibenden Elektron,

$g_{X^-,z} = g_{hh,z} - g_{1e,z}$. Die Zeeman Aufspaltung des Biexzitons wird durch den entsprechenden g -Faktor $g_{2e,z}$ des Elektrons in der zweiten Schale bestimmt, da sich alle weiteren Teilchen kompensieren. Für Übergänge zum Triplettzustand sind deren g -Faktoren mit einzubeziehen. Mit $\tilde{\Delta}_1 = 0$ ergibt sich für den ungemischten Triplettzustand $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ wie für den Trion-Grundzustand $g_{hh,z}$, während ein reiner $|\pm \frac{1}{2}\rangle$ Zustand verbunden ist mit $g_{hh,z} - (g_{1e,z} + g_{2e,z})$. Demnach wären die Aufspaltungen von X^- und XX_2^- gleich groß, wohingegen der rechte Teil der Abb. 4.13 zeigt, dass alle drei g -Faktoren unterschiedlich groß sind.

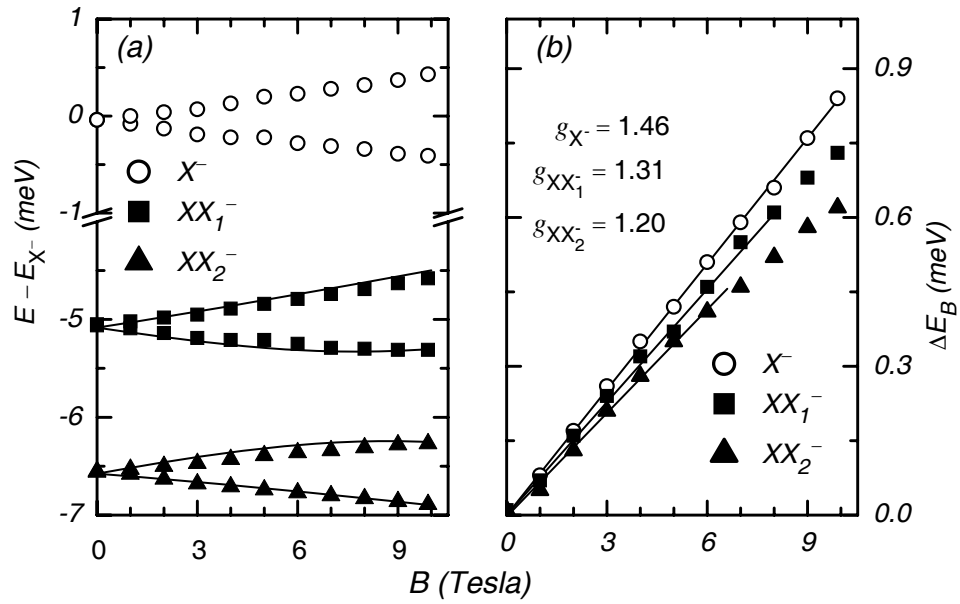


Abbildung 4.13: a) Punkte: Aufspaltung von X^- und $XX_{1,2}^-$ im Magnetfeld. Linien: Simulation. b) Energiedifferenzen aus Messkurven (Punkte) sowie abgeleitete g -Faktoren (Linien).

Die Energiedifferenz ΔE_B zwischen oberer und unterer Komponente einer Linie ist für kleine Magnetfeldstärken $B < 6$ T in guter Näherung eine lineare Funktion von B . Sie ist in Abb. 4.13 b) dargestellt. Dadurch können die g -Faktoren der drei Linien quantifiziert werden. Während $g_{X^-} = 1.46$ für den Trion-Grundzustand in guter Übereinstimmung zu Literaturwerten steht [15, 26], weichen die Werte von $g_{XX_1^-} = 1.31$ und $g_{XX_2^-} = 1.20$ sowohl untereinander als auch von g_{X^-} ab. Dies ist dem Einfluss der anisotropen $e - h$ Austauschwechselwirkung zuzuschreiben. Bei höheren Magnetfeldern zeigt der Chart in Abb. 4.13 a) für die beiden inneren Komponenten von $XX_{1,2}^-$ deutlich ein nichtlineares Verhalten. Diese Nichtlinearität lässt sich nicht mit

einer quadratischen diamagnetischen Verschiebung erklären, denn in diesem Fall beträfe die Abweichung vom linearen Verhalten alle vier Komponenten von $XX_{1,2}^-$ und darüber hinaus in dieselbe energetische Richtung. Wie zu sehen, stoßen sich die beiden inneren Linien mit zunehmendem Magnetfeld scheinbar gegenseitig ab, ein Effekt, der unter dem Namen „level repulsion“ bzw. „level anticrossing“ bekannt und eine Konsequenz der Austauschwechselwirkung ist. Numerisch lässt sich dieses Verhalten leicht reproduzieren, indem zum Austausch-Hamiltonoperator (4.11) noch ein linearer Magnetterm addiert wird. Die entsprechenden Linien aus der Simulation sind in Abb. 4.13 mit eingezeichnet, sie zeigen eine gute Übereinstimmung mit den Messdaten. Das bedeutet, höhere Effekte, die in den Rechnungen nicht berücksichtigt werden, spielen in der Tat eine untergeordnete Rolle.

Berücksichtigt man die anisotrope Austauschwechselwirkung und setzt für den Triplettzustand die gemischten Wellenfunktionen aus Gl. (4.16) an, so ergeben sich in linearer Näherung⁸ die g -Faktoren der biexzitonischen Übergänge zu

$$g_{XX_1^-} = \frac{g_{1e} - g_{2e}}{2} + \frac{\tilde{\Delta}_0}{\sqrt{(\tilde{\Delta}_0)^2 + 2(\tilde{\Delta}_1)^2}} \left(g_h - \frac{g_{1e} + g_{2e}}{2} \right),$$

$$g_{XX_2^-} = -\frac{g_{1e} - g_{2e}}{2} + \frac{\tilde{\Delta}_0}{\sqrt{(\tilde{\Delta}_0)^2 + 2(\tilde{\Delta}_1)^2}} \left(g_h - \frac{g_{1e} + g_{2e}}{2} \right).$$

Wie dabei unschwer zu erkennen ist, liefert die Differenz $g_{XX_1^-} - g_{XX_2^-}$ direkt ein Maß für die Differenz der elektronischen g -Faktoren zwischen erster und zweiter Schale, g_{1e} und g_{2e} . Es zeigt sich, dass diese Differenz für mehrere gemessene QP immer positiv ist, d.h. $g_{XX_1^-} > g_{XX_2^-}$ und damit $g_{1e} > g_{2e}$. Der Elektron g -Faktor in ZnSe ($g_e = 1.2$) ist dreimal größer als in CdSe [82]. Ein stärkeres Eindringen der $1e$ Einhüllenden Funktion in die ZnSe-Barriere könnte die Beziehung der beobachteten g -Faktoren erklären. Die $2e$ -Schale ist gegenüber der $1e$ -Schale durchschnittlich 80 meV ins Hochenergetische verschoben (siehe Kap. 4.5.3). Demzufolge dehnt sie sich in der QP-Ebene mehr aus und ist weniger ausgedehnt in Wachstumsrichtung. Entsprechend erfährt sie einen größeren Einfluss von der CdSe-haltigen Benetzungsschicht.

Die Summe der beiden g -Faktoren ist dagegen eine reine Funktion von $\tilde{\Delta}_1/\tilde{\Delta}_0$, dem Verhältnis anisotroper zu isotroper Elektron-Loch Austauschwechselwirkung und bietet demnach eine unabhängige Methode, diese Größe zu bestimmen. Für den in diesem Abschnitt betrachteten QP #2 ergibt sich $\tilde{\Delta}_1/\tilde{\Delta}_0 = 0.48$, ein Wert, der gut mit dem nach der ersten betrachteten Methode bestimmten Wert aus Kap. 4.5.1 übereinstimmt. Es zeigt sich, dass die

⁸d.h. ohne Berücksichtigung des level repulsion Effekts

anisotrope Austauschwechselwirkung zwischen einem Elektron in der zweiten Schale und einem Loch in seiner untersten Schale viel stärker ist als in neutralen QP mit beiden Teilchen auf der untersten Schale, obwohl beide derselben Morphologie unterliegen. Das Elektron auf der zweiten Schale erfährt eine vorhandene Anisotropie in stärkerem Maße, was diesen Effekt erklären könnte. Die starke Mischung der Spinfunktionen im angeregten Zustand ermöglicht einen kombinierten Spinumklapp von Elektron und Loch, wodurch eine Möglichkeit zur optischen Manipulation von Spins in geladenen QP gegeben wird (siehe Kap. 4.5.4). Da die Effizienz des Spinumklapps von der relativen Stärke der anisotropen $e - h$ Austauschwechselwirkung abhängt, bestätigen die Messungen eine schnelle Relaxation der Triplettzustände.

4.5.3 Energetische Position des Triplettzustandes

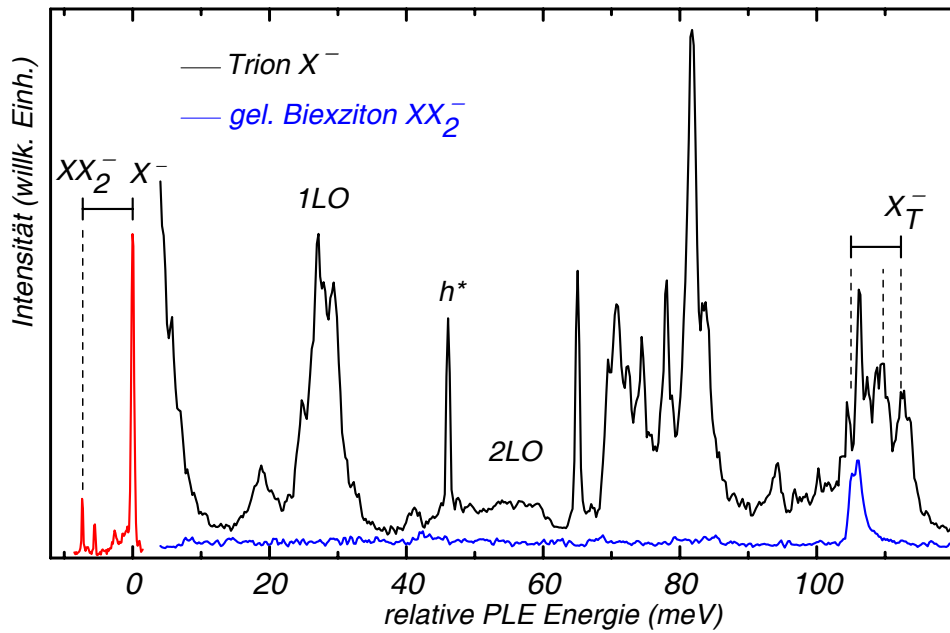


Abbildung 4.14: Anregungsspektrum vom Trion (schwarz) sowie vom geladenen Biexziton XX_2^- (blau). Rot: Die Peaks der PL des Quantenpunkts zeigen die Detektionsenergien auf. Waagerechte Balken entsprechen dem Energieabstand zwischen X^- und XX_2^- (siehe Text).

Neben der eindeutigen Zuordnung der Emissionslinien von X^- und $XX_{1,2}^-$ zu demselben QP liefert die Anregungsspektroskopie am „leeren“ sowie am mit einem e-h Paar „gefüllten“ geladenen Quantenpunkt die Möglichkeit, die Energieposition des Trion-Triplettzustandes zu bestimmen. Die zugehörigen

Spektren sind in der Abb. 4.14 dargestellt und gegen die Energiedifferenz zwischen Anregung und Trion-Grundzustand, $\hbar\omega_{\text{Anr}} - E_{X-}^S$, aufgetragen. Gemäß dem Schema von Abb. 2.1 wird so die Energieabhängigkeit der Absorption von Photonen getestet. Detektionsenergien sind entsprechend die Emissionsenergie des Trions für den „leeren“ QP (E_{X-}^S) bzw. des geladenen Biexzitons für den „gefüllten“ QP. Ein kleines PL-Spektrum, aufgenommen mit nicht-resonanter Anregung, ist zur Verdeutlichung in Abb. 4.14 rot eingezeichnet. Der Nullpunkt der Energieachse entspricht der Emissionsenergie vom Trion-Grundzustand.

Das Anregungsspektrum des Trions zeigt eine Fülle von Details. Der Energiebereich bis ca. 50 meV oberhalb des Grundzustandes wird neben LO-Phononen durch angeregte Lochzustände bestimmt, die in Kap. 4.3 behandelt werden. Die Resonanzen sind zur Identifikation mit in die Abb. 4.14 eingezeichnet. Mit höherer Anregungsenergie wird das Anregungsspektrum vom Trion zunehmend komplex und es kommt zur Überlagerung von Resonanzlinien. Das macht eine sichere Zuordnung unmöglich. Verschiedene Ansätze hierzu in der Literatur behandeln unter anderem die starke Phononkopplung [83] bzw. die Mischung höher angeregter Zustände [84, 75].

Die Anregungsspektren von XX_1^- und XX_2^- unterscheiden sich vom Erscheinungsbild her nicht voneinander. Zur Erzeugung eines geladenen Biexzitons sind zwei Photonen erforderlich. Die blaue Kurve in Abb. 4.14 zeigt über weite Bereiche keine Absorption. Dies ist eine Folge des Pauli-Prinzips, wenn der Quantenpunkt mit einem Trion besetzt ist. Ein erzeugtes Elektron muss genügend Energie besitzen, um die zweite Schale zu besetzen, da die unterste bereits mit zwei Elektronen voll besetzt ist. Der erste merkliche Peak bei 105 meV lässt sich mit kaskadierter Absorption von Photonen erklären. Das erste Photon erzeugt ein angeregtes Trion im zuvor „leeren“ Quantenpunkt, das schnell in den Grundzustand relaxiert. Dann wird das zweite Photon resonant absorbiert ($1e^21h^1 \rightarrow 1e^22e^11h^2$) und generiert ein geladenes Biexziton.

Mit Hilfe der Anregungsspektren kann die bisher unbekannte Energieposition des Triplettzustandes festgestellt werden. Die Energien vom Trion-Grundzustand (E_{X-}^S), Triplettzustand (E_{X-}^T) und vom Grundzustand des geladenen Biexzitons (E_{XX-}) können mit Hilfe der Einteilchenenergien geschrieben werden (siehe Gl. (4.19)). Hierbei wird die Feinstruktur des Triplettzustandes für den Moment vernachlässigt. Die Energieposition des Zerfalls des geladenen Biexzitons im PL Spektrum ist daraus folgend gegeben durch:

$$\hbar\omega_{\text{PL}} = E_{XX-} - E_{X-}^T = E_{X-}^S - (W_{XX-} - W_{X-}^S - W_{X-}^T). \quad (4.23)$$

In W sind die zustandsspezifischen Coulomb-Wechselwirkungen zusammengefasst. Im PLE-Spektrum des geladenen Biexzitons ist die Energie des ersten

Peaks gegeben durch

$$\hbar\omega_{\text{PLE}} = E_{XX^-} - E_{X^-}^S = E_{X^-}^T - (W_{XX^-} - W_{X^-}^S - W_{X^-}^T). \quad (4.24)$$

Der Vergleich der beiden Formeln zeigt, dass die Energiedifferenz zwischen dem Trion-Triplettzustand und dem ersten Peak im PLE-Spektrum des geladenen Biexzitons dieselbe ist wie zwischen dem Trion-Peak und dem Peak des geladenen Biexzitons im PL-Spektrum. Das Vorzeichen der Energiedifferenz zeigt, dass der Triplettzustand höherenergetisch der resonanten Anregungsenergie des geladenen Biexzitons liegt, ebenso wie die PL-Linie von XX^- niederenergetisch der Linie von X^- liegt. In der Tat lassen sich im PLE-Spektrum des Trions von Abb. 4.14 zwei schwache aber klar auflösbare Peaks erkennen. Ihre Energiedifferenz ist nahezu identisch zu der zwischen den Linien XX_1^- und XX_2^- im PL-Spektrum. Der optische Übergang vom Triplett- in den Grundzustand ist wenig wahrscheinlich, da er Elektron und Loch aus unterschiedlichen Schalen einschließt. Vermutlich erfolgt die Relaxation hauptsächlich nichtstrahlend unter Phononenbeteiligung. Entsprechend schwach sind die Peaks ausgeprägt, sie konnten jedoch an mehreren QP festgestellt werden. Die PLE-Daten zeigen demnach eine Energiedifferenz zwischen Singulett-Grundzustand und angeregtem Triplettzustand des Trions von 105 meV. Dieser Wert ist von QP zu QP individuell verschieden, liegt aber in derselben Größenordnung, es wurden an weiteren QP beispielsweise 80 meV gemessen. Ebenso sind auch andere Features wie Anzahl und Energieposition von höheren angeregten Zustände individuelle Merkmale eines QP. Lediglich die Phonon-Replika sowie die Energieposition des ersten angeregten Lochzustandes zwischen 35 und 48 meV oberhalb des Grundzustandes stellen generelle Merkmale dar.

Im PLE-Spektrum des Trions befindet sich genau an der Energieposition des ersten Peaks im $XX_{1,2}^-$ Spektrums eine Resonanz verminderter Absorption. Es zeigt sich, dass dieser Dip als einziges Merkmal im PLE-Spektrum des Trions erhalten bleibt, wenn der Trion-Übergang überlagert durch nichtresonante Anregung gesättigt wird. Für Details zur sogenannten Zweistrahl- oder Zweifarben-PLE-Spektroskopie siehe [85]. Diese nichtlineare Anregung zeigt zweifelsfrei die kaskadierte Absorption zweier Photonen zur Erzeugung eines geladenen Biexzitons. Mit zunehmender Anregungsdichte wird es möglich, in einem einfach besetzten QP ein zweites Elektron-Loch Paar zu generieren, falls die Photonenergie groß genug ist, um resonant die zweite Elektronenschale anzuregen. Im Folgenden wird zunächst die resonante Anregung der Triplettzustände untersucht, anschließend erfolgt die Diskussion der resonanten Anregung des geladenen Biexzitons.

4.5.4 Optische Kontrolle des Spins des residenten Elektrons

Der Triplettzustand des Trions kann benutzt werden, um optisch den Spin des residenten Elektrons zu manipulieren. Ein Hinweis auf eine solche Manipulation liefert der zirkulare Polarisationsgrad ρ_C des PL-Signals. Entsprechende Messungen am Ensemble wurden in Kap. 4.1 präsentiert. Ein negativer Polarisationsgrad unter Anregung mit σ^+ polarisiertem Licht kann mit einer Anhäufung von residenten Elektronen mit orientiertem Spin $-\frac{1}{2}$ interpretiert werden [63]. Der erforderliche Spinumklapp kann am Triplettzustand des Trions unter Beteiligung der anisotropen Elektron-Loch Austauschwechselwirkung erfolgen [86].

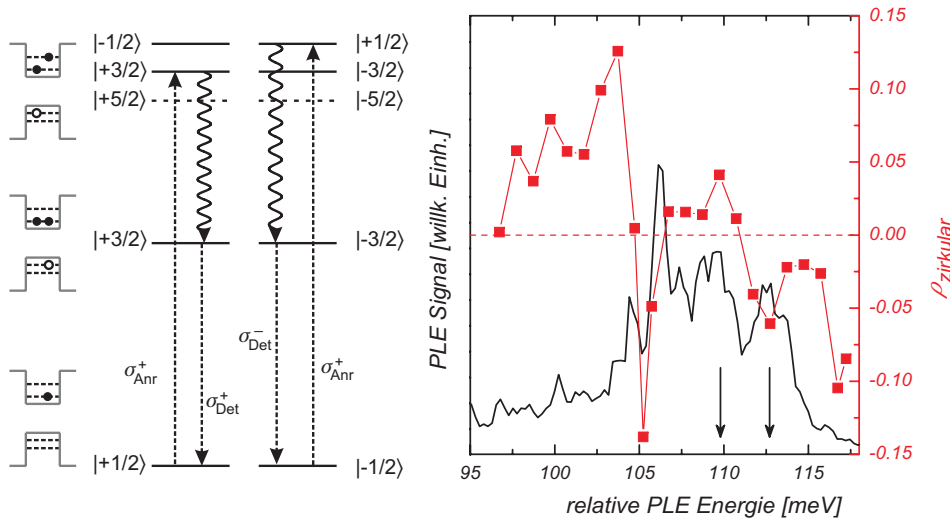


Abbildung 4.15: Links: Photoabsorptionsschema sowie Relaxationspfade in einem geladenen QP bei resonanter Anregung des Triplettzustandes. Rechts: PLE-Signal eines geladenen QP, Detektion an der X^- Linie (schwarze Kurve). Rot: zirkularer Polarisationsgrad des PLE-Signals. Pfeile markieren die resonante Anregung der Triplettzustände $\phi_{1,2}^\pm$.

In Abb. 4.15 ist das Anregungsspektrum eines Quantenpunkts im Bereich des Triplettzustandes polarisationsaufgelöst dargestellt, im linken Teil der Abb. findet sich das zugehörige Schema der Anregungs- und Relaxationspfade. Die Anregung erfolgt mit σ^+ polarisiertem Licht, die PL wird wie weiter oben beschrieben zirkular polarisationsaufgelöst detektiert. Die Identifikation des Triplettzustandes erfolgt aus der Energierelation in (4.24). Deutlich sind die beiden Peaks des Triplettzustandes zu erkennen, ihre Energiepositionen (+110 meV und +113 meV) relativ zum Trion-Grundzustand sind

im Spektrum mit zwei Pfeilen markiert. Ein breiter Untergrund unter den scharfen Peaks könnte durch die Überlagerung angeregter Zustände und LO-Phonon-Replika verursacht sein. Auch energetisch tiefreichende Zustände der Restschicht werden als Ursache für einen Absorptionsuntergrund diskutiert [87]. Deutlich erkennbar ist, dass sich die Polarisation des PLE-Signals zwischen den beiden Zuständen umkehrt. Die Linienbreiten der beiden Zustände sind mit ca. 2 meV sehr viel breiter als im PL-Spektrum, zum einen sicherlich verursacht durch das schwache Signal und den relativ starken Untergrund. Zum anderen könnte eine kurze Lebensdauer, bedingt durch eine hohe Streuwahrscheinlichkeit mit Phononen eine Verbreiterung verursachen. Bei Ware *et al.* konnte an nahezu untergrundfreien PLE-Spektren an diesen Resonanzen ein zirkularer Polarisationsgrad von $\rho_C \approx +0.7$ bzw. $\rho_C \approx -0.9$ für den Übergang von ϕ_1^\pm bzw. ϕ_2^\pm in den Trion-Grundzustand nachgewiesen werden [86].

Das Schema im linken Teil der Abb. 4.15 demonstriert das Zustandekommen der Polarisationen. Resonante Einstrahlung führt zu direkter Anregung des Triplettzustandes, dessen sechs Zustände wie bekannt in vier optisch erlaubte und zwei optisch verbotene aufspalten. Die vier optisch erlaubten Zustände gliedern sich wie bekannt zu zwei jeweils zweifach entarteten Niveaus. Zunächst wird die anisotrope Austauschwechselwirkung vernachlässigt. Der höherenergetische Zustand ist $|\pm\frac{1}{2}\rangle$, der niederenergetische $|\pm\frac{3}{2}\rangle$, wie in Abb. 4.15 links gekennzeichnet. Die σ^+ Anregung trifft auf eine der zwei prinzipiell möglichen Spinprojektionen des (Elektron-) Ausgangszustandes. Falls das residente Elektron zum Zeitpunkt der Anregung die Spinprojektion $+\frac{1}{2}$ hat, kann lediglich der niederenergetischere Triplettzustand $|+\frac{3}{2}\rangle$ angeregt werden. Bei einer Relaxation in den Trion-Grundzustand ändert sich der Spin des Elektrons nicht, bei der anschließenden Rekombination wird deshalb wie beobachtet ko-polarisiertes σ^+ Licht emittiert. Im zweiten Fall wird der Triplettzustand $|+\frac{1}{2}\rangle$ angeregt. Zur Relaxation in den Grundzustand $|-\frac{3}{2}\rangle$ muss sich der Drehimpuls um -2 ändern. Ein isolierter Umklapp eines Elektronspins ist wegen der reduzierten Wechselwirkung in einem QP sehr unwahrscheinlich [88]. Wahrscheinlicher ist ein kombinierter Spinumklapp von einem der beiden Elektronen und dem Loch. Wie im letzten Kapitel diskutiert, koppelt im Triplettzustand $|+\frac{1}{2}\rangle$ mit $|-\frac{3}{2}\rangle$ über den anisotropen $e-h$ Austausch zu ϕ_2^+ . Über diese Kopplung ist eine Relaxation in den Trion-Grundzustand $|-\frac{3}{2}\rangle$ möglich, dabei kommt es zu einem kombinierten Spinumklapp von einem Elektron und dem Loch. Eine Rekombination des Trions mit jetzt umgekehrten Lochspin führt zur σ^- Emission, entgegengesetzt polarisiert zur Anregung.

Genau diese beiden Situationen zeigen sich an den durch Pfeile markier-

ten Resonanzen im PLE-Spektrum in Abb. 4.15. Die beiden möglichen Anregungen des Triplettzustandes mit σ^+ polarisiertem Licht unterscheiden sich durch ihren Ausgangs- und Endzustand. Die gemessenen Polarisationsgrade $\rho_C(+110\text{meV}) = +0.05$ und $\rho_C(+113\text{meV}) = -0.06$ bestätigen das links in der Abb. dargestellte Schema.

Die resonante Anregung eines geladenen QP in den Triplettzustand kann damit als Sonde für den Spin des residenten Elektrons betrachtet werden. Durch die Energiedifferenz der beiden angeregten Triplettzustände erfolgt eine spinselektive Anregung mit σ^+ polarisiertem Licht. Eine Absorption erfolgt nur bei entsprechender Ausrichtung des Spins des residenten Elektrons. Der Trend des Polarisationsgrades stimmt mit den angesprochenenen Messungen an III-V QP überein [86].

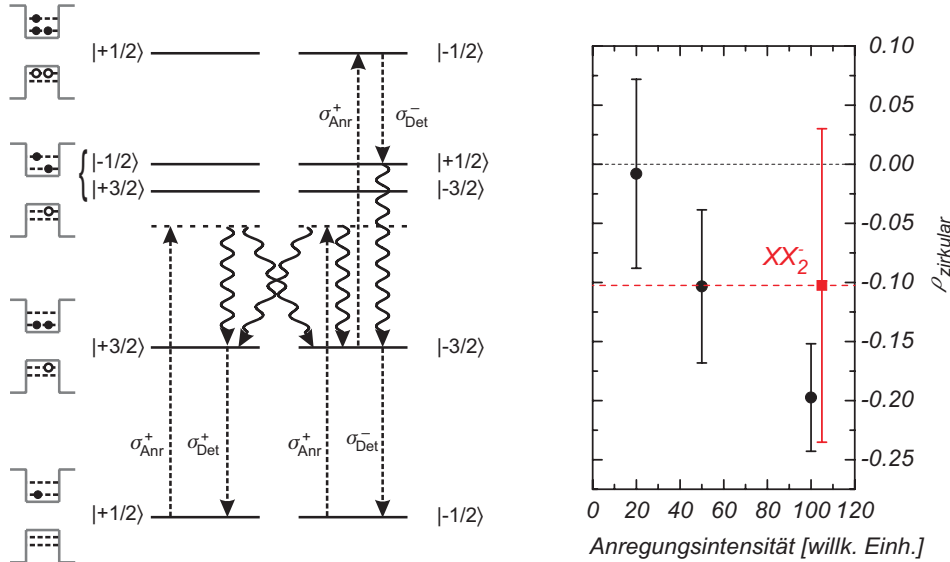


Abbildung 4.16: Links: Schema der resonanten Anregung des geladenen Biexzitons. Rechts: Intensitätsabhängigkeit des zirkularen Polarisationsgrad im PLE-Spektrum am Trion-Grundzustand bei resonanter Anregung des Übergangs $X^- - XX^-$ Schwarz: Trion-Grundzustand, rot: XX_2^- Linie.

Ein zweiter interessanter Bereich bezieht sich auf den Energiebereich knapp unterhalb der Triplett-Resonanz im PLE-Spektrum in Abb. 4.15. Der Punkt mit dem stärksten negativen zirkularen Polarisationsgrad befindet sich bei $\hbar\omega_{\text{Anr}} - E_{X^-}^S = +105\text{ meV}$. Er bezieht sich auf den Dip des PLE-Spektrums, der mit der resonanten Anregung von geladenen Biexzitonen assoziiert ist (siehe Kap. 4.5.3). Am Ensemble zeigt sich eine Abhängigkeit des negativen zirkularen Polarisationsgrades von der Anregungsintensität.

Der oben diskutierte Spinumklapp-Prozess am Triplettzustand verläuft unter der Beteiligung von einem Photon und ist damit nicht abhängig von der Anregungsintensität. Wie im Folgenden gezeigt wird, kann auch ein kaskadierter Zwei-Photonen-Prozess zu einer expliziten Intensitätsabhängigkeit führen. Cortez *et al.* argumentieren, eine lange Spin-Lebensdauer des residenten Elektrons führe zu einer Anreicherung von Spin $-\frac{1}{2}$ Elektronen [63], was ebenfalls in einer Intensitätsabhängigkeit resultiert.

In Abb. 4.16 links ist der Prozess skizziert, der zur kaskadierten Anregung von geladenen Biexzitonen führt. Eingestrahlt σ^+ polarisiertes Licht regt im geladenen QP ein Trion an. Die Energie liegt unterhalb des Triplettzustandes, daher reicht die Exzessenergie nicht zu dessen resonanter Anregung aus, sondern der Zustand relaxiert in den Grundzustand. Möglich sind dabei die bereits diskutierte Anregung von Löchern in höhere Schalen oder die Erzeugung von LO-Phononen. Wie im letzten Kapitel gezeigt, können die Lochzustände linear polarisiert sein, daher ist die Anregung mit einem σ^+ Photon zunächst unabhängig von der Spinprojektion des residenten Elektrons. Eine Relaxation in den Grundzustand führt daher zu einer gleichmäßigen Besetzung von $|\frac{3}{2}\rangle$ und $|\frac{1}{2}\rangle$ Trionen. Trifft bei hoher Anregungsintensität vor Rekombination des Trions ein weiteres σ^+ Photon gleicher Frequenz ein, kann dieses wegen der ausreichenden Energie ein geladenes Biexziton erzeugen. Der Drehimpuls des Photons beschränkt den Prozess auf den Übergang $|\frac{3}{2}\rangle + \sigma^+ \rightarrow |\frac{1}{2}\rangle_{XX^-}$. Eine anschließende Rekombination des geladenen Biexzitons führt auf den Triplettzustand des angeregten Trions. Hierbei können wegen der Spinauswahl nur die Zustände $|\frac{3}{2}\rangle$ oder $|\frac{1}{2}\rangle$ angeregt werden. Die weitere Rekombination des Triplettzustandes folgt analog dem oben präsentierten Schema. Der Prozess erzeugt eine Anhäufung des residenten Elektrons mit Spin $s_e = -\frac{1}{2}$. Wie der rechte Teil der Abb. 4.16 zeigt, ist der Prozess intensitätsabhängig. Je häufiger der biexzitonische Zustand besetzt wird, desto größer ist der resultierende negative Polarisationsgrad. Ohne Anregung von Biexzitonen ist die Trion-Emission an dieser Position des Spektrums unpolarisiert, da in diesem Fall beide Übergänge $|\pm\frac{3}{2}\rangle \rightarrow \sigma^+ + |\pm\frac{1}{2}\rangle$ mit gleicher Wahrscheinlichkeit angeregt werden.

Zusätzlich kann die Emission des Biexziton-Zerfalls als Test dienen, denn gemäß dem Schema in Abb 4.16 erfolgt diese polarisiert. Im hier dargestellten Fall ist der XX_2^- Übergang σ^- polarisiert. In voller Übereinstimmung zeigt der Polarisationsgrad der XX_2^- Emission im rechten Teil der Abb. 4.16 ein negatives Vorzeichen. Der große Fehlerbalken rührt von der geringen Signalstärke her. Nach gleicher Überlegung ist der komplementäre XX_1^- -Übergang σ^+ polarisiert, allerdings gemäß Tabelle 4.1 um den Faktor zwei vermindert.

Quantitativ sollte der XX_2^- -Übergang stärker negativ polarisiert sein als

der Trion-Übergang σ^- polarisiert ist. Bei diesem Vergleich muss allerdings neben dem Polarisationsgrad der Übergänge auch der Besetzungsgrad der Anfangs- und Endzustände berücksichtigt werden. Im hier vorliegenden Fall kann man sich dazu auf den Endzustand beschränken, denn aufgrund des großen linearen Polarisationsgrads des Triplett-Endzustandes ϕ_2^+ ist der Besetzungsgrad hier nicht zu vernachlässigen. Bei Berücksichtigung der linearen Polarisation ist der „wahre“ zirkulare Polarisationsgrad ρ'_C definiert als

$$\rho_C = \rho'_C \frac{1 - (\tan \alpha)^2}{1 + (\tan \alpha)^2}. \quad (4.25)$$

Der Parameter $\tan \alpha$ ist definiert über die Kopplungsstärke zwischen den beiden Triplettzuständen $|\pm \frac{3}{2}\rangle$ und $|\mp \frac{1}{2}\rangle$. Für den hier betrachteten ϕ_2^+ (siehe Gl. (4.16)) Endzustand ergibt sich mit Gl. (4.17) und $\tilde{\Delta}_1/\tilde{\Delta}_0 = 0.48$ für den wahren Polarisationsgrad $\rho'_C = 1.21 * \rho_C$. Der Wert ist in Abb. 4.16 nicht berücksichtigt, da die Korrektur die Verhältnisse nicht ändert. Der Wert des Polarisationsgrades des Biexziton-Zerfalls ist etwas kleiner als der Polarisationsgrad vom Zerfall des Trion-Grundzustandes, allerdings können neben dem angesprochenen großen Fehlerbalken zusätzlich auch Schwankungen der Anregungsintensität aufgrund des zeitlichen Abstandes zwischen den beiden Messungen das Bild beeinflussen. Die Intensitätsabhängigkeit des Polarisationsgrades in Abb. 4.16 für den Trion-Grundzustand zeigt, dass mit zunehmender σ^+ Anregungsdichte der XX^- -Zustand $|\frac{1}{2}\rangle_{XX^-}$ besetzt wird. Entsprechend kommt es zur Umverteilung von residenten Elektronen mit Spin $+\frac{1}{2}$ zum Spin $-\frac{1}{2}$, d.h. zur optischen Orientierung des Spins des residenten Elektrons. Qualitativ ähnelt der Verlauf der Intensitätsabhängigkeit an den Ensemble-Messungen aus Kap. 4.1.

Voraussetzung dieser beiden diskutierten Prozesse der optischen Kontrolle des Elektronspins – über den Triplettzustand sowie über das geladene Biexziton – ist, dass während des Vorgangs kein Spin durch Streuprozesse umklappt. Durch die kompliziertere Bandstruktur des Lochs bestimmt dessen Relaxationszeit im Allgemeinen die obere zeitliche Grenze für derartige Prozesse. Die charakteristischen Spin-Lebensdauern können durch zeitaufgelöste Messungen bestimmt werden. So zeigen sich wie schon erwähnt für das Loch im Grundzustand Spin-Lebensdauern von länger als 10 ns [70]. Messungen an den verwendeten CdSe-QP führen auf eine Spin-Lebensdauer des residenten Elektrons in der Größenordnung von 100 ns bei moderaten Anregungsintensitäten, limitiert durch die Lebensdauer des residenten Elektrons im QP [89]. Durch die reduzierte Dimensionalität liegen diese Zeiten mehr als eine Größenordnung über denen vergleichbarer Quantengraben- bzw. Volumen-Strukturen und unterstreichen das mögliche Potential von QP im Hinblick

auf spintronische Anwendungen. Eine quantitative Analyse der nachgewiesenen optischen Kontrolle muss entsprechende Prozesse und Effekte, die das Spingedächtnis beeinflussen, mit berücksichtigen.

Zusammenfassend können die Ergebnisse an einzelnen QP die eingangs beschriebenen Beobachtungen der Ensemble-Messungen, im speziellen die negative zirkulare Polarisierung, näher spezifizieren. Dabei können verschiedene Mechanismen identifiziert werden, die eine optische Kontrolle bzw. Orientierung des Spins des residenten Elektrons in negativ geladenen QP ermöglichen. Neben der Kopplung zwischen leichten und schweren Löchern kann die Beteiligung des Triplettzustandes nachgewiesen werden. Die Bestimmung der energetischen Lage des Triplettzustandes führt zum direkten Nachweis des Vorzeichenwechsels der Polarisierungssignales am Triplettzustand. Das ermöglicht eine rein optische Methode zum selektiven Nachweis des Spinzustandes des residenten Elektrons.

Kapitel 5

Spineigenschaften semimagnetischer Quantenpunkte

In diesem Kapitel werden Untersuchungen sowohl der statischen wie auch der dynamischen Eigenschaften von CdMnSe-QP vorgestellt. Im Mittelpunkt der Überlegungen steht dabei die Frage, ob Wechselwirkungen zwischen dem Mn-Spinsystem und den Ladungsträgern in semimagnetischen QP gegenüber höherdimensionalen Systemen wie z.B. einem Quantengraben oder einem Volumenkristall Modifikationen aufweisen. Untersuchungen an einzelnen QP liefern hier die Aussicht, mögliche Ursachen auf der Ebene einzelner lokalisierter Ladungsträger zu studieren. Es werden drei Thematiken untersucht: der mittlere Mn-Spin $\langle s_z \rangle$ im äußeren Feld, die Fluktuationen ΔS_z ¹ und die Spin-Gitter-Relaxation. Die Größen werden im Folgenden näher eingeführt. Es wird jeweils eine starke Abhängigkeit von der Mn-Konzentration x erwartet, deshalb ist ein wesentlicher Parameter der systematischen Untersuchungen die Abhängigkeit der Messgrößen von der Mn-Konzentration.

Semimagnetische Halbleiter-Nanosysteme, z.B. Heterostrukturen oder einzelne Quantengraben werden seit ca. 20 Jahren untersucht [31]. Die Kombination der Eigenschaften semimagnetischer Halbleiter mit dem hohen Ladungsträger-Einschluss in Quantenpunktsystemen bietet die Möglichkeit, Wechselwirkungen lokalisierter Ladungsträger mit einer magnetischen Spinumgebung zu studieren.

Eine Übersicht über die generellen magneto-optischen Eigenschaften der hier verwendeten CdMnSe-QP findet sich in Kap. 5.1. Beispielsweise zeigt

¹ S_z : Gesamtspin aller relevanten Mn-Ionen, s_z : normiert auf die Anzahl der beteiligten Mn-Ionen

ein Vergleich zwischen semimagnetischen Quantengraben und QP, die unter identischen Bedingungen gewachsen wurden, dass im Magnetfeld die Werte für den effektiven g -Faktor g_{eff} unterschiedlich groß sind [40]. Dies ist ein Indikator für den mittleren Mn-Spin. Mögliche Einflussgrößen auf g_{eff} werden in Kap. 5.2 diskutiert.

Der starke Ladungsträger-Einschluss kann zu einer Modifikation der (s,p)-d Austauschwechselwirkung führen. Theoretische Untersuchungen zeigen eine mögliche Veränderung der (s,p)-d Austauschkonstanten α und β aus Gl. (2.21) auf, da sich aufgrund der Impulsunschärfe infolge der starken Lokalisation eine k -Abhängigkeit bemerkbar machen könnte [90]. Eine entsprechende Abhängigkeit wurde an Quantengraben gefunden [91]. Neben einem möglichen Einfluss der starken Lokalisation ist auch die relativ zum Volumen größere Oberfläche eines QP-Systems von Bedeutung. Deshalb erfolgen die Untersuchungen in diesem Zusammenhang auch im Hinblick auf einen möglichen Einfluss der Grenzflächen auf die optischen Eigenschaften. Ein möglicher Einfluss zeigt sich z.B. durch den in Gl. (2.16) eingeführten Parameter $r(x)$, der der reduzierten Anzahl von freien Mn-Ionen aufgrund der Paarbildung bzw. der Mn-Mn-Wechselwirkung Rechnung trägt. Die Wahrscheinlichkeit einer Paarbildung ist unterschiedlich für Mn-Ionen im Volumenkristall und solchen, die an einer Grenzfläche (z.B. zu einer nichtmagnetischen Schicht) sitzen.

Die Untersuchung einzelner QP überwindet die inhomogene Verbreiterung der PL-Bande des Ensembles. Die systematische Untersuchung der spektralen Breite der Emissionslinien einzelner QP bei $B = 0$ ist komplementär zu den Messungen im Magnetfeld und erfolgt in Kap. 5.3. Von Vorteil erweist sich dabei die Lage der Exziton-Grundzustandsenergie E_X relativ zum inneren Mn-Übergang ${}^6A_1 \rightarrow {}^4T_1$, da es nicht zur Ausbildung von Exziton-Magneto-Polaronen (EMP) kommt. Diese werden im Zusammenhang mit verdünnt magnetischen Halbleitern diskutiert [92, 93]. Dabei kann ein Ladungsträger bzw. ein Exziton die Spins der ungepaarten Mn-Ionen in seiner Umgebung relativ zu seinem eigenen ausrichten. Das führt zu einer Energieverschiebung des Exzitons, da sich hierdurch der mittlere Spin der Mn-Ionen innerhalb der Wellenfunktion des Exzitons ändert. Ein so ferromagnetisch ausgerichteter Komplex wird als Exziton-Magneto-Polaron bezeichnet. Voraussetzung für die Ausbildung eines EMP ist eine genügend lange Lebensdauer des Exzitons zur Ausrichtung seiner Umgebung. In II-VI Halbleiter-Nanostrukturen liegt die Zeit τ_{MP} zur EMP-Bildung in der Größenordnung von 100 ps [94, 95, 96]. Die energetische Lage der PL in den dort untersuchten Strukturen liegt unterhalb der des inneren Mn-Übergangs². Anders bei den

²Ausnahme ist [94], dort werden Exzitonen an Grenzflächen untersucht

hier diskutierten Quantenpunkt-Strukturen, aufgrund der energetischen Lage oberhalb des ${}^6A_1 \rightarrow {}^4T_1$ Übergangs des Mn-Systems haben die Exzitonen eine kurze Lebensdauer $\tau < 10$ ps [97]. Diese schließen wegen $\tau \ll \tau_{\text{MP}}$ eine EMP-Bildung aus. Das erlaubt die Beobachtung des Mn-Spinensembles *ohne* dessen Spinorientierung an den Ladungsträgern. Die mittlere Mn-Spinverteilung ist daher im vorliegenden Falle nur durch die Temperatur und das Magnetfeld gegeben.

Speziell bei $B = 0$ erfährt das Exziton im Quantenpunkt die Wechselwirkung mit einer unorientierten Mn-Spinumgebung, ohne diese zu beeinflussen. Durch die Beschränkung auf einzelne QP ist es möglich, die statistischen Fluktuationen der betrachteten Mn-Spins, ΔS_z , die die großen Linienbreiten der PL verursachen, zu untersuchen. Wegen der Entartung des Mn-Grundzustandes bei $B = 0$ wird hier zusätzlich ein Temperatureinfluss eliminiert.

Auf einer längeren Zeitskala als die Spinausrichtung bei einer EMP-Bildung findet das Kühlen bzw. Heizen des Mn-Spinensembles statt. Hierbei steht die unmittelbare Umgebung eines einzelnen QP als Spinreservoir nicht zur Verfügung, da diese selbst vom Prozess betroffen ist. Dieser Vorgang wird durch die Spin-Gitter-Relaxationszeit τ_{SLR} ³ charakterisiert. Nach Gl. 2.16 führt eine Änderung der Spintemperatur T_S zu einer geänderten Magnetisierung und damit zu einem veränderten mittleren Spin des Mn-Ensembles. Die Dynamik des Kühlens bzw. Heizens des Spins wird auf die PL abgebildet und kann so verfolgt werden. Zusätzlich wird in dieser Arbeit eine Temperaturänderung des Mn-Spinsystems durch einen rein optischen Aufbau realisiert. Das Fehlen der EMP-Bildung ermöglicht es, die QP-PL als Sensor für die Spintemperatur zu benutzen und so letztere ebenfalls optisch zu bestimmen.

Die Temperatur des Mn-Spinsystems hängt von der Anregungsintensität ab. Im stationären Fall stellt sich ein Gleichgewicht mit der Gittertemperatur ein. Aus der Intensitätsabhängigkeit lassen sich Rückschlüsse auf den Relaxationsmechanismus von den photoangeregten Ladungsträgern zu den Mn-Spins ziehen, des weiteren kann somit die Spintemperatur als Funktion von der Anregungsintensität des Lasers kalibriert werden (Kap. 5.5.1).

Darauf aufbauend erfolgt die Messung der Mn-Spindynamik. Zentraler Punkt bei der systematischen Untersuchung ist die Frage nach dem zugrunde liegenden Mechanismus. Aus Volumenkristallen ist die Bedeutung von gekoppelten Mn-Ionen bzw. Mn-Clustern für die Spin-Gitter-Relaxation bekannt [35]. Diese zeigt sich auch an den QP durch eine Abhängigkeit der SLR-Zeit von der Mn-Konzentration. Zum anderen stellt sich die Frage, ob durch die reduzierte Dimensionalität der Relaxations-Mechanismus modifi-

³engl. Spin lattice relaxation

ziert wird. Untersuchungen anderer Gruppen an etwas dickeren CdMnSe-QP-Strukturen zeigen zusätzlich zur Spin-Gitter-Relaxation ein langsames Verhalten, welches mit einer Spin-Diffusion zwischen Quantenpunkten und Restschicht interpretiert wird [98].

5.1 Magneto-optische Charakterisierung

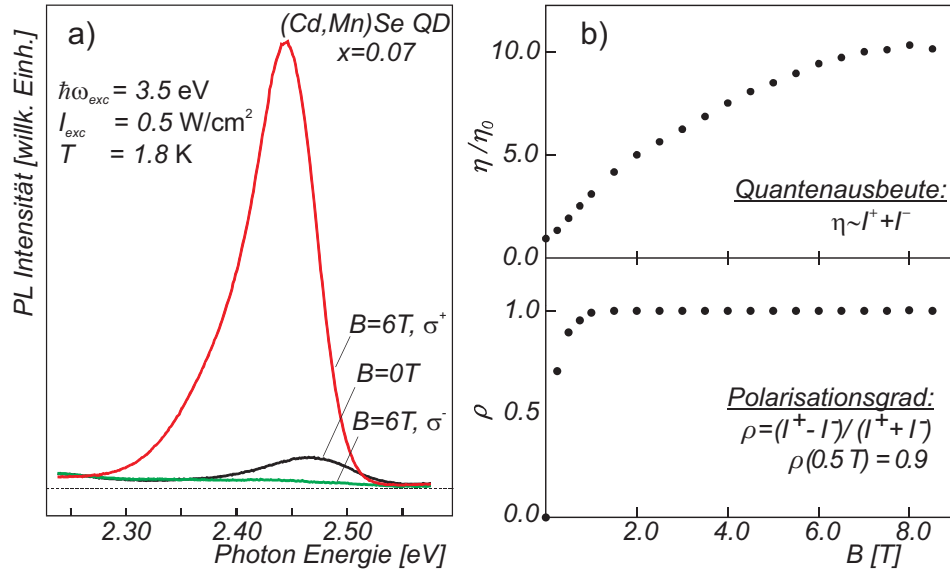


Abbildung 5.1: a) Photolumineszenz eines Ensembles semimagnetischer Quantenpunkte ($x = 0.07$); b) Relative Quantenausbeute sowie Polarisationsgrad der aufgespaltenen PL-Banden in Abhängigkeit von einem externen Magnetfeld ($\vec{B} \parallel [001]$).

Die grundlegenden optischen Eigenschaften semimagnetischer Quantenpunkte sind in Abb. 5.1 für eine Probe mit dem Mn-Gehalt $x = 0.07$ dargestellt. Ohne externes Magnetfeld B ist die PL eines Ensembles von hier ca. 10^7 angeregten Quantenpunkten einbandig und inhomogen verbreitert mit einer Halbwertsbreite von ca. 100 meV (siehe Fig. 5.1a)). Vergleiche mit identisch gewachsenen Quantengraben haben gezeigt, dass übereinstimmend mit den Wachstumsdaten Mangan homogen in die Benetzungsschicht sowie die Quantenpunkte eingebaut ist [40]. Die Anregung erfolgt hier mit den UV-Linien eines Ar-Ion-Lasers oberhalb der ZnSe-Barriere.

In einem externen Magnetfeld $\vec{B} = (0, 0, B)$ spaltet die PL-Bande auf in zwei Komponenten σ^\pm , die entgegengesetzt zueinander zirkular polarisiert

sind. Die Größe der Aufspaltung ist vergleichbar der Halbwertsbreite der PL-Bande. In dieser Magnetfeld-Geometrie koppeln dunkle und helle Exzitonen nicht miteinander. Wie in den theoretischen Grundlagen (vgl. Kap. 2.3) eingeführt, ist der Übergang heller Exzitonen mit $J_{X,z} = \pm 1$ stärker aufgespalten als der dunkler Exzitonen mit $J_{X,z} = \pm 2$ (siehe Abb. 2.3 auf Seite 16). Für Feldstärken $B \gtrsim 0.5$ T gilt für den energetisch niedrigsten Exzitonenzustand: $J_{X,z} = +1$. Mit zunehmenden Feldstärken ist lediglich diese niederenergetische σ^+ Komponente sichtbar. Voraussetzung für eine solche Thermalisierung der Exzitonen ist zum einen, dass die Energieaufspaltung der hellen Exzitonen ΔE_X größer ist als die thermische Energie ($\Delta E_X \gg k_B T$). Zum anderen lassen sich Spinumklapp-Zeiten τ_{SF} für die Exzitonen im sub-ps-Bereich ableiten, d.h. $\tau_{\text{SF}} \ll \tau$.

Die Thermalisierung findet auch im zirkularen Polarisationsgrad $\rho_C = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-}$ Ausdruck: Im unteren Teil der Abb. 5.1 b) zeigt dieser eine nahezu vollständige σ^+ Polarisation schon bei kleinen Feldstärken. Mit I^\pm sind die spektral integrierten PL-Intensitäten bezeichnet, die die entsprechenden Spinkomponenten σ^\pm widerspiegeln.

Bei $B = 0$ ist die Quantenausbeute $\eta \propto I^+ + I^-$ ca. um einen Faktor 300 geringer als bei den nichtmagnetischen CdSe-Quantenpunkten [40], was eine nicht unbedeutende experimentelle Herausforderung darstellt. Die geringere Quantenausbeute wird gemeinhin mit einem nichtstrahlenden Energietransfer von den angeregten Ladungsträgern zu einem Intra-Mn-Übergang vom Grundzustand 6A_1 in den angeregten Zustand 4T_1 erklärt [99, 100]. Letzterer ist im Kristallfeld aufgespalten. Die Energie des Mn-Übergangs liegt bei ca. 2.1 eV, die beobachteten Exzitonenenergien der Quantenpunkte liegen ca. 0.3...0.4 eV darüber. Ein entsprechend effektiver Transfer ist zu erwarten, zumal der Überlapp der eingesperrten Elektron- und Lochwellenfunktionen mit dem Mn-haltigen Gebiet groß ist, worauf in Abschnitt 5.4 noch näher eingegangen wird.

Wie im oberen Teilbild von Abb. 5.1 b) zu erkennen, wird die reduzierte Quantenausbeute mit wachsendem Magnetfeld in Faraday-Geometrie teilweise aufgehoben. Bei $B = 6$ T ist die Quantenausbeute um einen Faktor 10 größer als bei $B = 0$ T. Zur Erklärung dieses Effekts muss das gemeinsame System von Exziton und Mn-Ion betrachtet werden [99, 100]. Die Spinauswahlregel des Mn-Übergangs unterscheidet sich für helle ($J_X = 1$) und dunkle ($J_X = 2$) Exzitonen. Im Falle heller Exzitonen sind Mn-Anregungen mit $\Delta s_z = 0$ erlaubt, im Falle dunkler Exzitonen gilt $\Delta s_z = \pm 1$. Insbesondere ist für helle Exzitonen eine Anregung des Mn-Zustandes mit $|s_z| = 5/2$ verboten, weil im angeregten Mn-Zustand mit $\tilde{s} = \frac{3}{2}$ nur Spinzustände mit $\tilde{s}_z = \pm \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2}$ existieren. Bei $B = 0$ erfolgt die Besetzung des sechsfach entarteten Mn-Grundzustandes gleichmäßig. Im Magnetfeld wird diese Entartung

aufgehoben und die Zustände mit $s_z = -\frac{5}{2} \dots \frac{5}{2}$ spalten mit dem Mn- g -Faktor $g_{\text{Mn}} = 2$ gemäß dem Zeeman-Effekt auf. Im thermischen Gleichgewicht erfolgt die Besetzung dieser sechs Energieniveaus des Grundzustandes $N(s_z) \propto \exp(-g_{\text{Mn}}\mu_B B(s_z + 5/2)/k_B T)$, d.h. mit wachsendem B ist zunehmend der energetisch günstigste Zustand mit $s_z = -\frac{5}{2}$ besetzt. Ebenso ist für Magnetfeldstärken $B > 0.5$ T der niedrigste Exzitonenzustand mit $J_{X,z} = +1$ aufgrund der angesprochenen Thermalisierung der Exzitonen zunehmend besetzt. Da genau diese Kombination durch Spinauswahl-Regeln verboten ist, wird mit wachsendem B zunehmend der Energietransfer zur Intra-Mn-Anregung unterdrückt und damit eine größere PL-Ausbeute beobachtet.

In Voigt-Geometrie erfolgt eine Kopplung zwischen dunklen und hellen Exzitonen. Über diese ist daher auch für helle Exzitonen eine Mn-Anregung für $|s_z| = \frac{5}{2}$ möglich. Übereinstimmend wurde ein geringeres Anwachsen der Quantenausbeute in ähnlichen CdMnSe-QP in Voigt-Geometrie beobachtet [100].

Bei den obigen Betrachtungen wurde der Ladungszustand der QP bisher stillschweigend als neutral betrachtet. Auch im Falle einfach geladener QP ist die (s,p)-d Energieaufspaltung des Trions größer als die thermische Energie. Wenn die Spinumklapp-Zeiten auch in Anwesenheit residenter Ladungsträger vergleichsweise kurz gegen die Lebensdauern angenommen werden, führt dies analog zu einer Thermalisierung der Ladungsträger vor der Rekombination. Erfolgt wie im vorliegenden Fall die Anregung linear polarisiert oberhalb der Barrierenenergie, werden Elektron-Loch-Paare ohne Vorzugspolarisation erzeugt. Für die hier verwendeten Magnetfeldstärken $B \leq 10$ T ist der niedrigste Trion-Zustand stets durch den (Singulett-)Grundzustand gegeben. Aufgrund des Polarisationsverhaltens kann daher nicht zwischen geladenen und ungeladenen QP unterschieden werden, weil beide unter diesen Bedingungen identisches Verhalten zeigen. Ein modifiziertes Verhalten aufgrund eines denkbaren Einflusses höherer Trion-Zustände kann wegen des großen Energieabstandes (z.B. Triplettzustand bei negativ geladenen Trionen, Energiedifferenz typisch 80 meV, siehe Kap. 4.5.3) ausgeschlossen werden.

Einen wichtigen Unterschied stellen jedoch die residenten Ladungsträger dar, die lange genug im QP verweilen, um ein EMP zu erzeugen, d.h. die Mn-Spinumgebung auszurichten. Vereinfacht gilt im äußeren Feld für den mittleren Spin pro Mn-Ion in diesen geladenen QP der extremale Fall: $|\langle s_z \rangle_{\text{EMP}}| = \frac{5}{2}$ aufgrund der ferromagnetischen Spinausrichtung an den residenten Ladungsträgern im äußeren Feld⁴. Die PL von geladenen QP ver-

⁴ Eine mögliche Spinprojektion des residenten Ladungsträgers wurde dabei parallel oder antiparallel zum externen Feld angenommen

schiebt daher nicht im Magnetfeld, im Gegensatz zur PL neutraler QP. Daher sollte sich ein Einfluss geladener QP in einer Magnetfeld-abhängigen Halbwertsbreite der Gesamt-PL bemerkbar machen⁵. Aufgrund der nahezu gleichen ermittelten Werte von 62 ± 4 meV bei $B = 0$ T und 58 ± 3 bei $B = 6$ T für $x = 0.07$ kann umgekehrt auf einen nur geringen Anteil geladener QP an der Gesamt-PL geschlossen werden⁶. Die Diskussionen in den folgenden Kapiteln beziehen sich daher ohne gesonderte Erwähnung stets auf neutrale QP.

5.2 Mn-Abhängigkeit des mittleren Mn-Spins

Die Energieverschiebung ΔE_X des Maximums der PL in Abhängigkeit vom angelegten Magnetfeld ist in Abb. 5.2 links zu sehen. Diese folgt einer Brillouin-Funktion. Nach Gl. (2.19) ist dies für Valenz- und Leitungsband bekannt, jedoch sind hier Elektronen und Löcher beteiligt, die jeweils ihrem Confinement in den Quantenpunkten unterliegen.

Aus der Energieverschiebung lässt sich analog zu Gl. (2.22) für das Exziton im QP ein effektiver g -Faktor nach

$$g_{\text{eff}} = \frac{2\Delta E_X}{\mu_B B} \quad (5.1)$$

von 350 für kleine Feldstärken ($B = 0.5$ T) errechnen. Für größere Feldstärken sättigt die Verschiebung, so dass $g_{\text{eff}} \approx 200$ für $B = 6$ T erreicht.

Aus PL-Messungen am QP-Ensemble, wie sie in Abb. 5.1 dargestellt sind, sind für mehrere Proben die Magnetfeld-Charts des jeweiligen PL-Maximums in Abhängigkeit der Mn-Konzentrationen bestimmt worden. Daraus wurden die effektiven g -Faktoren bei $B = 6$ T abgeleitet. Bei dieser Feldstärke befindet sich die Energieverschiebung nahe der Sättigung und der Einfluss der Temperatur der Mn-Spins auf den Mittelwert der Spinprojektion (siehe Formel 2.19) ist gering. Der effektive g -Faktor stellt damit ein Maß für die maximale Magnetisierung der Mn-Ionen bei gegebenem x dar⁷. In Abb. 5.2 ist dieser in Abhängigkeit von x dargestellt. Die Werte erreichen $g_{\text{eff}} = 240$ für $x = 0.08$ und sättigen für größere x . Weiter zeigt sich im rechten Teil der Abbildung ein Hinweis auf einen Einfluss der Geometrie bzw. Dimension

⁵Eine spektrale Trennung der PL-Banden von geladenen und neutralen QP im äußeren Feld ist nicht zu erwarten, da die PL-Halbwertsbreite stets größer als die maximal ermittelte Verschiebung bleibt.

⁶gemittelte Werte über unterschiedliche Anregungsintensitäten

⁷Beitrag der isolierten Mn-Ionen, eine Ausrichtung der Paare bei $B \gtrsim 10$ T wird nicht berücksichtigt.

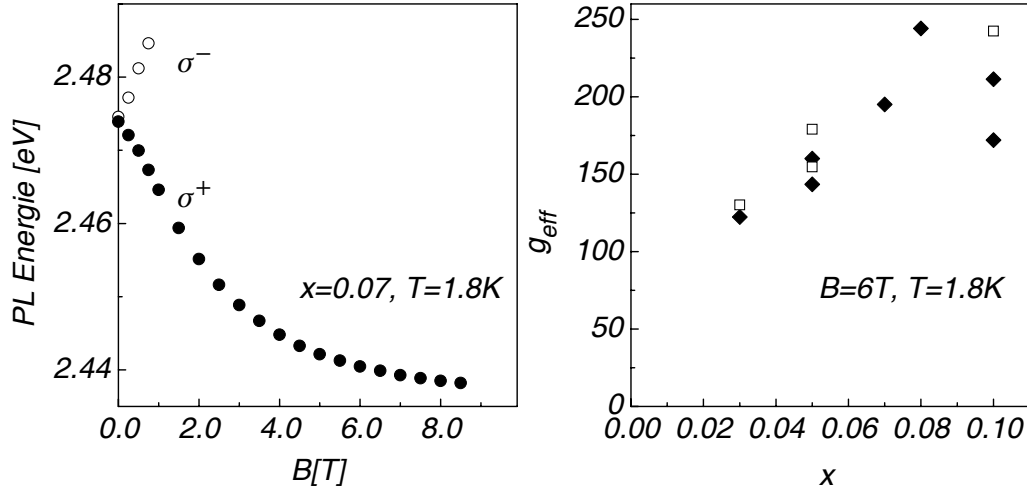


Abbildung 5.2: Links: Energieverschiebung der aufgespaltenen PL-Bande in Abhängigkeit vom Magnetfeld ($B \parallel [001]$); rechts: Gemessene effektive g -Faktoren g_{eff} in Abhängigkeit von x bei $B = 6$ T. Gefülltes Symbol: QP, offenes Symbol: Quantengraben (Daten aus [40]).

auf die Größe von g_{eff} . Es finden sich im Trend höhere Werte von g_{eff} für Quantengraben als für Quantenpunkte, die mit identischen Wachstumsparametern hergestellt wurden. Der Einfluss der Struktur-Geometrie auf die Austauschenergie wird in Kap. 5.4 diskutiert und quantifiziert.

5.3 Spinfluktuationen in Abhängigkeit von x

Statische Messungen am QP-Ensemble als auch an einzelnen Quantenpunkten liefern komplementäre Erkenntnisse über die (s,p)-d Wechselwirkung von Ladungsträgern mit Mn-Ionen. Wie im Folgenden gezeigt wird, offenbart die Untersuchung einzelner QP die Spinfluktuationen ΔS_z der Mn-Ionen als Ursache für Linienverbreiterungen.

Verkleinert man die angeregten Gebiete bzw. die Detektionsfläche auf der Probe, z.B. durch Verwendung von Mesostrukturen, wie in Kap. 3.1 beschrieben, werden nur noch wenige Quantenpunkte gleichzeitig angeregt bzw. detektiert. Abb. 5.3 zeigt Spektren von drei CdMnSe Quantenpunkt-Proben, die unter Verwendung der μ -PL-Spektroskopie gemessen wurden (spektrale Auflösung 0.3 meV). Sie zeigt für Mesa-Kantenlängen von 200 nm die Lumineszenz nur noch weniger einzelner Linien. Die Anzahl der abzählbaren Linien ist konsistent mit den Quantenpunktdichten, die aus AFM-Messungen bekannt sind [40]. So kann sicher geschlossen werden, dass die beobachteten

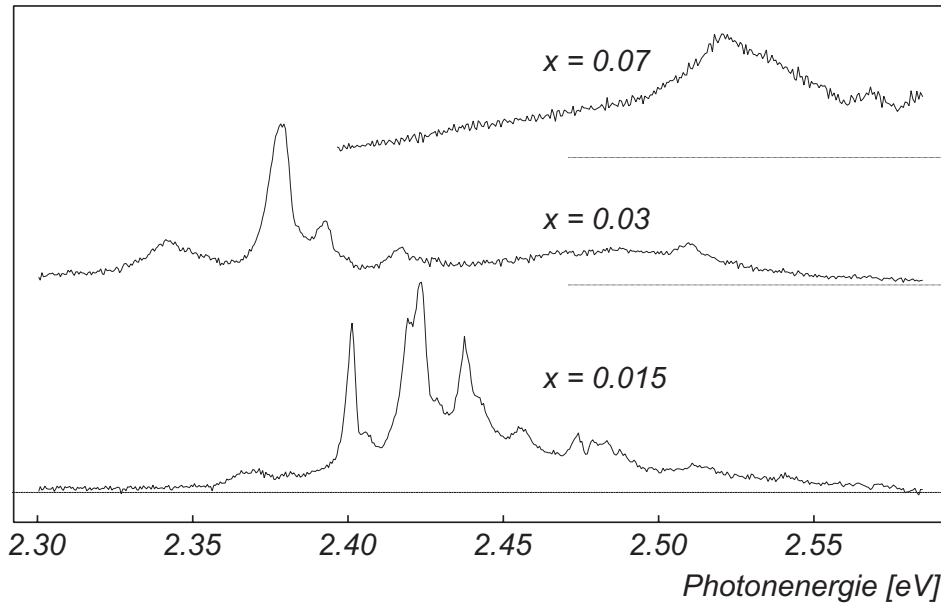


Abbildung 5.3: a) Photolumineszenz einzelner Mesa (Kantenlänge 200 nm) von Proben semimagnetischer Quantenpunkte mit unterschiedlichem nominellen Mn-Gehalt x

Spektren wirklich die Lumineszenz einzelner Quantenpunkte und nicht eine Überlagerung mehrerer Linien darstellen. Für alle drei gemessenen Proben unterschiedlicher nomineller Mn-Konzentrationen x erkennt man Linienbreiten⁸ in der Größenordnung einiger meV, was zwei Größenordnungen über denen nichtmagnetischen Quantenpunkten liegt. Vergleichbar große Linienbreiten wurden auch durch μ -PL-Untersuchungen an ähnlichen II-VI Quantenpunkten festgestellt [101, 95]. Die zitierten Strukturen unterscheiden sich jedoch durch die erwähnte EMP-Bildung von den hier untersuchten Systemen.

In Abbildung 5.4 sind die Linienbreiten γ einzelner Quantenpunkte gegen x aufgetragen, jeweils gemittelt über eine Mesafläche von $200 \times 200 \text{ nm}^2$. Mit wachsendem Mn-Gehalt x zeigt sich zunächst ein steiler Anstieg der Linienbreiten. Bei einem Mn-Gehalt von $x = 0.07$ verflacht der Anstieg, was auf einen Grenzwert oder ein Maximum der Linienbreite für Mn-Konzentrationen $x \approx 0.07$ hinweist. Qualitativ ähnelt die Abhängigkeit der Linienbreiten dem Verhalten der effektiven g -Faktoren aus Abb. 5.2.

Die eingezeichneten vertikalen Fehlerbalken zeigen ein erhebliches Streuen der Werte für γ bei einer nominellen Mn-Konzentration auf. Dies weist

⁸ „FWHM“-Werte: *engl.*: „full width at half maximum“, volle Breite bei halbem Maximum

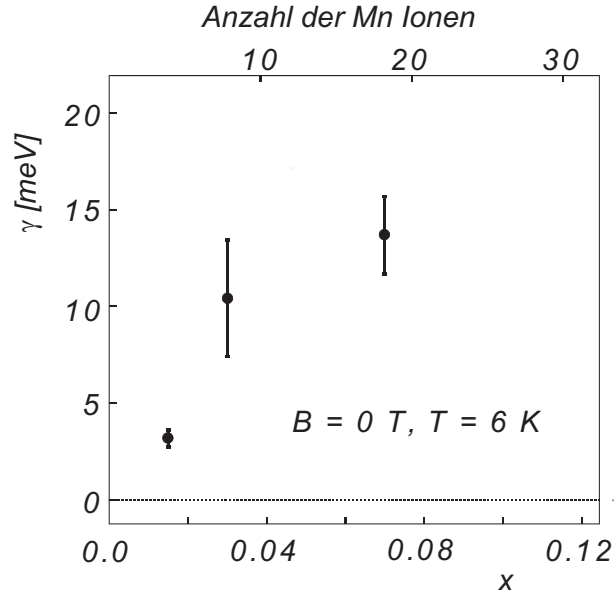


Abbildung 5.4: Gemessene Halbwertsbreiten einzelner CdMnSe Quantenpunkte in Abhängigkeit vom der nominalen Mn-Konzentration x . Die Fehlerbalken stellen die Streuung der Werte innerhalb eines Mesas dar.

darauf hin, dass die Halbwertsbreite sehr empfindlich von der genauen Mn-Konzentration abhängt. Dies kann durch verschiedene Mechanismen verursacht sein. Zum einen führt der stochastischen Charakter beim Einbau von Mn-Ionen zu einer Fluktuation ihrer Anzahl von QP zu QP, das führt entsprechend zu unterschiedlichen Linienbreiten innerhalb eines Mesas. Zum anderen erscheint eine Streuung im Prinzip auch durch die unterschiedliche Position der Manganionen innerhalb eines QP möglich. Die Stärke der Austauschwechselwirkung ist vom Ort abhängig, da die Aufenthaltswahrscheinlichkeit von Elektron und Loch durch die lokalisierte Wellenfunktion vorgegeben ist (siehe Abb. 5.5 links). Manganionen am Rand des Quantenpunktes haben einen kleineren Überlapp mit den Ladungsträgern, und somit tragen Spinfuktuationen dort weniger zur Verbreiterung bei als Manganionen, die sich im Zentrum des Quantenpunkts befinden, wo die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Ladungsträger am größten ist. Dieser Effekt ist jedoch klein, wie unter Vorwegnahme der Ergebnisse des nächsten Kapitels abgeschätzt werden kann. Am Rand des QP fällt die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte der Wellenfunktion von Elektron bzw. Loch lediglich auf Werte zwischen 0.2 und 0.5 vom Maximum im Zentrum des QP ab, so dass dadurch keine großen Effekte zu erwarten sind. Eine Berücksichtigung dieses Effekts kann nicht mehr im Rahmen der Molekularfeldnäherung erfolgen. Kürzlich durch-

geführte Experimente an CdMnTe-Quantenpunkten, die nur ein einziges Mn-Ion enthalten, zeigen eine spektroskopisch identifizierbare Kopplung mit allen sechs möglichen Spinprojektionen des Mn-Grundzustandes [102]. Die beobachtete Linienform der Emission hängt dabei sowohl von der Geometrie des Quantenpunktes als auch von der geometrischen Lage des Mn-Ions innerhalb des QP ab [103]. Das bestätigt die prinzipiell mögliche Ortsabhängigkeit der Austauschwechselwirkung bei der Betrachtung einzelner Mn-Ionen.

5.4 Quantifizierung: Elektron- und Loch-Aufenthaltswahrscheinlichkeit im QP

Zur Quantifizierung der ermittelten Messwerte von $\langle s_z \rangle$ bzw. ΔS_z in Abhängigkeit von x wird im Folgenden ein 3D-Quantentopf Modell benutzt, in dem beide Größen, effektiver g -Faktor sowie Linienbreite, nachvollzogen werden. Die Gittersymmetrie wird dabei nicht mit berücksichtigt. Zunächst wird dieses Modell erläutert. In einem ersten Schritt wird dann die Schrödingergleichung in dem Modell gelöst, was die Größen p_e bzw. p_h liefert, die von zentraler Bedeutung für die weitere Interpretation sind. Sie bezeichnen den Anteil der Wellenfunktion von Elektron bzw. Loch, der sich im semimagnetischen Gebiet, bestehend aus QP und Restschicht, befindet. Ein Vergleich mit experimentell gewonnenen Daten für die Grundzustandsenergien von Elektron und Loch bei einer vorgegebenen Mn-Konzentration dient als Test für die Plausibilität des Modells. Im zweiten Schritt wird dann die (s,p)-d Wechselwirkung berücksichtigt.

Die Energie des exzitonischen Grundzustandes im QP, E_X , gliedert sich bei $B = 0$ wie folgt:

$$E_X = E_g + E_{qc,e} + E_{qc,h} + E_{Coul}. \quad (5.2)$$

Dabei bezeichnet E_g innerhalb des Quantentopfs die Energie der Bandkante aus semimagnetischen $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ und $E_{qc,e}$ bzw. $E_{qc,h}$ die kinetische Energie, d.h. die Energieerhöhung des Grundzustandes von Elektron bzw. Loch aufgrund des einsperrenden Potentials. Mit E_{Coul} ist die Coulomb-Energie zwischen Elektron und Loch bezeichnet. Die Bandkantenenergie für ZnSe ist $E_g = 2.82$ eV. Für $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ wird eine lineare Interpolation zwischen CdSe [104] und MnSe [38] angesetzt: $E_g(x) = 1.765\text{eV}(1-x) + 3.3\text{eV}x$. Der relative Valenzband-Offset wird mit 0.3 angesetzt, die effektiven Massen sind $m_e = 0.13m_0$, $m_h = 0.22m_0$ ⁹ für Barriere und Topf [24]. Die Lochmasse wird dabei (ebenso wie die Elektronmasse) als isotrop angesetzt. Daraus ergeben

⁹ m_0 ist die freie Elektronenmasse

sich durchschnittliche Topftiefen von 0.7 eV für Elektron bzw. 0.3 eV für das schwere Loch.

Das Modell basiert auf Annahmen über die Morphologie und Größe eines Quantenpunktes, die sich aus Ergebnissen von AFM- und TEM-Messungen¹⁰ ableiten [40, 47]: Zum ersten ist die Höhe der Quantenpunkte mit 1.2 nm bekannt, der Durchmesser wurde experimentell zu < 10 nm bestimmt. Bei einer angenommenen linsenförmigen Oberfläche des Quantenpunkts mit einem Aspektverhältnis von 1 : 3 ergibt sich ein Durchmesser von 3.6 nm des Modellquantenpunkts. In der Höhe von 0.66 nm der verbleibenden Restschicht als 2 ML dicker Quantengraben ist eine ca. 10%-ige Vergrößerung durch kompressive Verspannung in der Restschicht enthalten. Abb. 5.5 a) illustriert die verwendeten Abmessungen. Als zweite Annahme werden die Potentialkanten als scharf angesetzt, da bei Strukturanalysen an CdSe-QP nur eine geringe Cd-Interdiffusion gefunden wurde [47]. Weil Cd stärker diffundiert als Mn [105], kann das Ergebnis auf CdMnSe-QP angewandt werden. Drittens wird eine spannungsinduzierte Verschiebung der Bänder als vernachlässigbar angenommen, da sich die Effekte von hydrostatischem Druck und Scherspannung größtenteils kompensieren.

Zur Bestimmung der Grundzustandsenergie des Schwerloch-Exzitons E_X werden im so definierten Potential nun die Einteilchen-Schrödingergleichungen (2.1) gelöst. Die Wellenfunktionen von Elektron und Loch im Grundzustand werden numerisch mit Hilfe der Methode der finiten Elemente berechnet. Die Coulomb-Wechselwirkung¹¹ wird iterativ berücksichtigt (Hartree-Näherung). Die im Schritt n berechnete Wellenfunktion des Lochs dient als Ausgangspunkt zur Bestimmung des neuen effektiven Potentials für das Elektron. Mit diesem kann in Schritt $n + 1$ die Elektron-Wellenfunktion neu berechnet werden. Diese dient wiederum zur Bestimmung des nächsten Potentials für das effektive Lochconfinement. Diese Rechnungen werden iteriert, bis die Lösungen innerhalb bestimmter Grenzen konvergieren, d.h. bis sich die Wellenfunktionen von Elektron und Loch jeweils von einer zur nächsten Lösung nur noch unwesentlich unterscheiden. Die Ergebnisse der Berechnungen sind in Abb. 5.5 a) in Form der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten von Elektron und Loch im QP-Grundzustand zusammengefasst.

Als Test des Modells kann die Energie des Exziton-Grundzustandes in Abhängigkeit von x berechnet werden. Wie Abb. 5.5 c) zeigt, stimmt diese gut mit den gemessenen Maxima der PL bei $B = 0$ T überein, das Modell spiegelt insbesondere den Trend zu höheren Energien mit steigendem Mn-Gehalt wider. Die Annahmen über die Größe des Modell-QP werden

¹⁰Streng genommen handelt es sich hier um Daten für nichtmagnetische CdSe-QP

¹¹ $\epsilon_0 = 9.6$ [24]

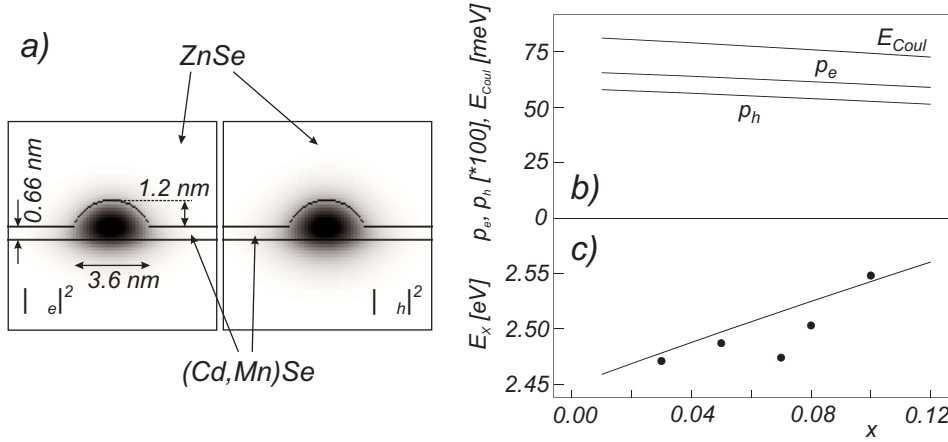


Abbildung 5.5: a) Berechnete Wellenfunktionen (quadriert) von Elektron und Loch im Grundzustand sowie Abmessungen des verwendeten Modell-Quantenpunktes. b) x -Abhängigkeit der Coulomb-Energie sowie der Größen p_e und p_h . c) Gemessene (Punkte) und berechnete (Linie) Grundzustandsenergien E_X in Abhängigkeit von x .

dadurch gerechtfertigt. Durch das starke einsperrende Potential beträgt die Coulomb-Energie $E_{Coul} \approx 80 \text{ meV}$, eingezeichnet in Teilbild b). Dieser Wert ist jedoch weiterhin klein gegen die Topftiefe sowohl vom Elektron als auch vom Loch. Da das Modell geeignet ist, die Grundzustandsenergie zu reproduzieren, wird es im folgenden Schritt benutzt, um die in Abb. 5.2 bzw. Abb. 5.4 dargestellten effektiven g -Faktoren sowie die Linienbreiten zu berechnen.

Dazu werden Angaben über die Anteile der Wellenfunktionen benötigt, die im semimagnetischen Gebiet mit den Mn-Ionen wechselwirken. Sie führen zur Größe der Energiekorrektur ΔE_X des Exziton-Grundzustandes, hervorgerufen durch die (s,p)-d-Wechselwirkung. Diese ist klein im Vergleich zu den Topftiefen $\widetilde{\Delta E_e}$ und $\widetilde{\Delta E_h}$ von Elektron und Loch. Deshalb wird ihr Einfluss auf die Wellenfunktionen von Elektron und Loch vernachlässigt. Die Energiekorrektur in 5.2 lässt sich in erster Ordnung störungstheoretisch behandeln:

$$\Delta E_X = \int_V \psi_e^* \Delta E^{LB} \psi_e d^3 r_e + \int_V \psi_h^* \Delta E^{VB} \psi_h d^3 r_h. \quad (5.3)$$

Die Bandverschiebungen von Elektron und Loch, ΔE^{LB} und ΔE^{VB} bestimmen sich aus Gl. (2.20). Um wie bisher mit Molekularfeldnäherung bzw. VCA¹² arbeiten zu können, werden die Wellenfunktionen $\psi_{e,h}$ von Elektron und Loch für die (s,p)-d Wechselwirkung durch einen rechteckigen Verlauf mit $|\psi_{e,h}|^2 = 0$ außerhalb und $|\psi_{e,h}|^2 = p_{e,h}$ innerhalb des semimagnetischen

¹²VCA: virtual crystal approximation

Gebiets genähert. Da sich die Einhüllenden Wellenfunktionen von Elektron und Loch auch innerhalb des QP noch über viele Elementarzellen erstrecken, scheint dieser Ansatz gerechtfertigt. Er erlaubt insbesondere, die Mn-Verteilung des semimagnetischen Gebiets unabhängig von der genauen Position eines bestimmten Mn-Ions zu behandeln, d.h. die (s,p)-d Wechselwirkung wird als räumlich konstant auf jedem Gitterplatz angesehen. Damit können ΔE^{LB} bzw. ΔE^{VB} vor das Integral gezogen werden. Das Integrationsgebiet V kann unterteilt werden in die Barriere und den Quantentopf, d.h. das semimagnetische Gebiet, bestehend aus Restschicht und Quantenpunkt, und durch die eingeführten Rechteckfunktionen für $\psi_{e,h}$ gilt:

$$\Delta E_X = p_e \Delta E^{\text{LB}} - p_h \Delta E^{\text{VB}}. \quad (5.4)$$

Hier bezeichnet p_j die Wahrscheinlichkeit, das Elektron ($j = e$) bzw. das Loch ($j = h$) innerhalb des semimagnetischen Materials (Quantenpunkt und Benetzungsschicht) anzutreffen. Die Rechnung berücksichtigt demnach die endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit ($p_j < 1$) der Ladungsträger in der Barriere bei endlich hohen Potentialbarrieren; die Werte für p_j werden explizit ausgerechnet, als Erweiterung zu früheren Rechnungen anderer Gruppen, z.B. [106]. Die VCA erlaubt für die Austauschkonstanten α und β die Verwendung der Werte für Volumenkristalle. Die Austauschkonstanten für $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ betragen $N_0\alpha = 0.23$ eV und $N_0\beta = -1.26$ eV [38].

Die genauen Ergebnisse der Rechnungen sind in Abb. 5.5 b) neben dem Wert der Coulombenergie dargestellt. Wegen der nur geringen Änderung der Werte von p_e und p_h im Intervall $0 < x \leq 0.12$ werden im folgenden konstante Werte für p_e und p_h von 0.63 bzw. 0.56 verwendet. Die Werte für Elektron und Loch sind in etwa gleich groß, weil sich die Effekte unterschiedlicher Massen und Topftiefen nahezu kompensieren. Die Größe der Werte deutlich kleiner als eins geben die geringe Größe der QP und große Confinement-Energien wieder. Die Quadrate der Wellenfunktionen für Elektron und Loch im Grundzustand sind ebenfalls in der Abb. 5.5 eingezeichnet. Deutlich ist die etwas stärkere Lokalisation des Elektrons im Modell-QP zu erkennen.

Der einzige verbleibende Ausdruck, der speziell für die semimagnetischen QP gewählt wird, ist die Reduktionsfunktion $r(x)$. Sie berücksichtigt, dass nur nicht-gepaarte Mn-Ionen an der Austauschwechselwirkung teilnehmen. Im Falle einer Struktur ohne äußere Beschränkung (Volumenkristall) beschreibt der Ausdruck $r_{\text{bulk}}(x) = (1 - x)^{12}$ den Anteil ungepaarter Mn-Ionen, weil $(1 - x)$ die Wahrscheinlichkeit ist, kein Mn-Ion auf einem Nächster-Nachbar-Platz im Kation-Untergitter zu finden [107], und 12 die Koordinationszahl des fcc¹³-Untergitters ist (siehe Kap. 3.1.1). Im Falle eines drei ML

¹³engl.: *face centered cubic*, kubisch-flächenzentriert

dicken Quantengrabens ist die Wahl $r_{3ML} = \frac{1}{3}(1-x)^{12} + \frac{2}{3}(1-x)^8$ angemessen, da hierdurch die verminderte Paarbildungs-Wahrscheinlichkeit an den Außenflächen berücksichtigt wird. Für das genaue $r(x)$ des Modell-Quantenpunkts mit Stranski-Krastanov-Morphologie kann durch seine „ausgebeulte“ Kugeloberfläche ein Wert zwischen diesen beiden Fällen erwartet werden. Einflüsse übernächster oder noch weiter entfernter Mn-Nachbarn können wegen der geringen Größe der Kopplungsenergien bei höheren Magnetfeldstärken ($B > 1$ T) vernachlässigt werden. Ihre Rolle bei $B = 0$ wird weiter unten diskutiert.

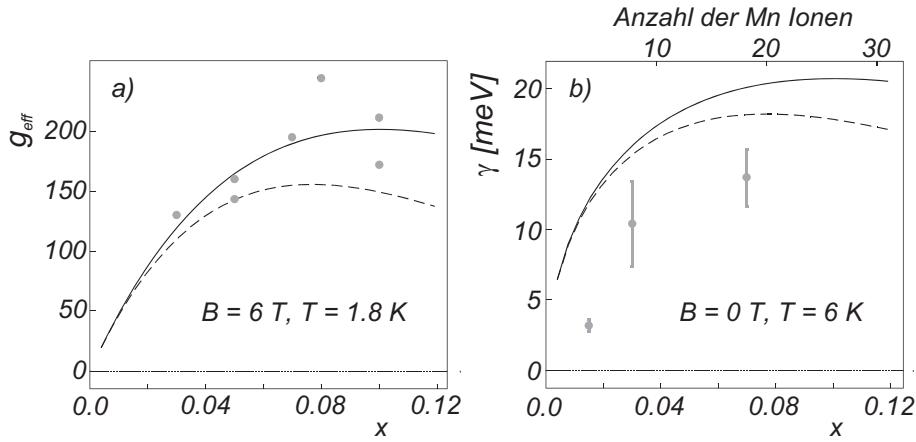


Abbildung 5.6: Links: Berechneten (Linien) effektiven g -Faktoren g_{eff} in Abhängigkeit von x bei $B = 6$ T. Zum Vergleich sind die gemessenen Werte aus Abb. 5.2 mit eingezeichnet (graue Punkte). Rechts: Gemessene (Punkte) und berechnete (Linien) Halbwertsbreiten einzelner $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -QP in Abhängigkeit vom der nominalen Mn-Konzentration x . Die Fehlerbalken stellen die Streuung der Werte innerhalb eines Mesas dar. Durchgezogene Linien nach r_{3ML} , gestrichelte Linien nach r_{bulk} (s. Text).

In einem Magnetfeld ist die mittlere Mn-Spinprojektion gegeben nach Gl. (2.19). Die dort einzusetzende effektive Spintemperatur $T_{eff} = 6$ K bestimmt sich aus einem Fit einer früheren Messung [40]. Mit den Gleichungen (5.4) und (2.20) erhält man für die Energieverschiebung des σ^\pm polarisierten Exzitons:

$$\Delta E_X^{(p)}(s_z) = \mp \frac{1}{2} x r(x) N_0 (p_e \alpha - p_h \beta) \langle s_z \rangle. \quad (5.5)$$

Hierbei ist mit $(p) = \sigma^\pm$ die Polarisation der emittierten PL bezeichnet. Mit (5.5) lassen sich sowohl die Linienbreiten als auch effektive g -Faktoren interpretieren. Letztere berechnen sich nach Gl. (5.1) für das σ^+ polarisierte Exziton. Man erkennt in Abb. 5.6, dass die experimentellen g -Faktoren eher

durch r_{3ML} beschrieben werden, was konsistent mit der linsenhaften Morphologie und einem spürbaren Einfluss der Grenzflächen ist. Schlussfolgernd kann die Sättigung der g -Faktoren für große x der zunehmenden Paarbildung (mit antiferromagnetischer Kopplung) zugeschrieben werden. Außerdem zeigt die gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment, dass die (s,p)-d Wechselwirkung hier nicht durch die Größe der Strukturen modifiziert ist. Die in [90] diskutierte Reduzierung der Austauschkonstanten α bzw. β durch die reduzierte Dimensionalität gegenüber Volumenhalbleitern wird hier nicht beobachtet.

Für die Linienbreite eines einzelnen QP ist es nicht sinnvoll, den Mittelwert $\langle s_z \rangle = 0$ (bei $B = 0$) zu betrachten, weil der entscheidende Einfluss durch die Abweichungen ΔS_z vom Mittelwert verursacht wird. Ohne externes Magnetfeld und ohne Polaronbildung fluktuiert jeder der Mn-Spins zufällig zwischen den sechs entarteten möglichen Projektionen $s_z = -5/2, \dots, +5/2$ entlang einer beliebigen gemeinsamen Achse. Deshalb trifft jedes Elektron-Loch-Paar, das durch Absorption eines Photons generiert wird, im Quantenpunkt auf eine unterschiedliche Mn-Spinprojektion.

Im Folgenden wird die PL-Linienbreite eines semimagnetischen Quantenpunktes mit den thermodynamischen Fluktuationen der Mn-Spins um ihren Mittelwert verknüpft. Sei N die Anzahl isolierter Mn-Ionen im Quantenpunkt volumen und $S_z = \sum_N s_z$ die Summe der Projektionen ihrer Drehimpulse entlang der ausgezeichneten Wachstumsachse [001]. Die Wahrscheinlichkeit f für einen bestimmten Wert S_z lässt sich für hinreichend große N durch eine Gauss-Verteilung [108] nähern:

$$f(S_z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi \langle S_z^2 \rangle}} \exp \left(-S_z^2 / 2 \langle S_z^2 \rangle \right), \quad \text{mit} \quad \langle S_z^2 \rangle = \frac{35}{12} N. \quad (5.6)$$

Eine nähere Betrachtung hierzu findet sich in Anhang B. Jeder Wert von S_z ist verbunden mit einer Energieverschiebung $\Delta E_X^{(p)}(S_z)$, die aus Gleichung (5.5) folgt, wenn anstelle des gemittelten Gesamtspins der Wert für S_z eingesetzt wird:

$$xr(x)N_{\text{Kat}} \langle s_z \rangle \rightarrow S_z. \quad (5.7)$$

Hierbei ist N_{Kat} die Anzahl der Kationenplätze im magnetischen Volumen V_m (Quantenpunkt plus Benetzungsschicht). Daraus berechnet sich N mit $N(x) = xr(x)N_{\text{Kat}}$. Typische Werte sind $N_{\text{Kat}} = 260$ für den hier verwendeten Modell-QP und $N \approx 8$ für $x = 0.05$. Durch die zeitliche Mittelung über viele Einzelereignisse liefern die experimentellen Messungen die spektrale Verteilung der PL, $I(E)$. Diese ist gegeben durch

$$I(E) = \sum_{p=+,-} \int dS_z f(S_z) \delta \left[E - \Delta E_X^{(p)}(S_z) \right], \quad (5.8)$$

wobei $(p) = \pm$ wieder die beiden Photon-Polarisationen bezeichnet, die durch die Quantenzahlen $s_{z,e} = \mp 1/2$, $j_{hh,z} = \pm 3/2$ in Gl. (2.20) bestimmt werden. Der Ausdruck für $I(E)$ lässt sich vereinfachen, indem man den Ausdruck für $\Delta E_X^{(p)}(S_z)$ einsetzt und die Integration durchführt. Das Ergebnis ist wieder eine Gaussfunktion für $I(E)$, mit einer Standardabweichung

$$\sigma_I = \frac{1}{2} \frac{N_0}{N_{\text{Kat}}} \sqrt{\frac{35}{12}} N(x) (\alpha p_e - \beta p_h). \quad (5.9)$$

Der Vorfaktor N_0/N_{Kat} ist gegeben durch $1/V_m$, N_0 bezeichnet wie bisher das inverse Volumen der Einheitszelle. In der Gleichung 5.9 findet sich also der Trend wieder, nachdem mit zunehmend geringerer Größe des Systems die Rolle von Fluktuationen zunimmt [109]. Bei gegebener Größe wächst σ_I mit der Wurzel der Anzahl der Mn-Ionen. Die so berechnete Linienbreite $\gamma(x) = \sqrt{8 \ln 2} \sigma_I$ ist in Abb. 5.6 b) für $r_{\text{bulk}}(x)$ (durchgezogene Linien) und $r_{3\text{ML}}(x)$ (gestrichelt) eingezeichnet. Man erkennt, dass der allgemeine Trend der experimentellen Daten gut reproduziert wird, allerdings besteht eine Diskrepanz von ca. 40% in der Größe der Werte. Da die Spinumklapp-Zeiten der Ladungsträger wie bekannt klein sind gegen die Lebensdauer ($\tau_{\text{SF}} \ll \tau$), könnte dies ein Hinweis sein auf eine partielle Spinrelaxation des Exzitons, d.h. der Spin des Exzitons richtet sich an der momentanen Spinkonfiguration seiner Manganumgebung aus und verringert damit seine Energie. Die so maximal erreichbare Verschmälerung der Linienbreite tritt für eine komplette Relaxation auf und beträgt 50%, was zu Werten führt, die sehr viel dichter an den beobachteten experimentellen Werten liegen. Ein weiterer, prinzipiell möglicher Einfluss stammt von der Kopplung der Mn-Ionen mit übernächsten oder noch weiter entfernten Nachbarn, die nicht im Ausdruck für $r(x)$ berücksichtigt werden. Dies kann bei $B = 0$ die Anzahl der ungekoppelten, isolierten Mn-Ionen weiter reduzieren, was ebenfalls zu niedrigeren Kurven in Abb. 5.6 (rechts) führt und diese näher an die experimentellen Werte bringt. Die hierfür charakteristischen Bindungsenergien liegen jedoch unterhalb der hier vorliegenden Proben Temperaturen, damit ist deren Einfluss klein.

5.5 Spintemperatur und Spin-Gitter-Relaxation

Neben den gut untersuchten statischen Eigenschaften von semimagnetischen Quantenpunkten sind bisher nur wenige Studien zur Dynamik dieser Systeme veröffentlicht worden [96, 110]. Wie in der Einleitung von Kapitel 5 angesprochen, bestimmt die Spin-Gitter-Relaxation die Zeit zum inkohären-

ten Umschalten der Magnetisierung des Mn-Ensembles. Bisherige Untersuchungen hierzu wurden überwiegend an Volumenkristallen sowie an Quantengraben durchgeführt [111, 112]. Eine systematische Untersuchung an Zn-MnSe/ZnBeSe bzw. CdMnTe/CdMgTe Multi-Quantengraben zeigt eine Variation der Spin-Gitter-Relaxationszeit τ_{SLR} über fünf Größenordnungen bei einer Variation von x im Bereich $0.01 \dots 0.11$ [113]. Dies weist auf die starke Empfindlichkeit der Messgrößen von der Mn-Konzentration hin. Neben der Bestimmung der reinen Zeitkonstanten stellt sich die Frage nach dem Mechanismus der Spin-Gitter-Relaxation in semimagnetischen QP und ein Vergleich zu höherdimensionalen Systemen. Neuere Untersuchungen zeigen an einigen QP-Strukturen eine im Vergleich zum Volumenkristall langsame Dynamik, die auf einen veränderten Relaxationsmechanismus schließen lässt [98]. Dazu wird in Kap. 5.5.2 eine systematische Untersuchung in Abhängigkeit vom Magnetfeld, der Temperatur und der Mn-Konzentration vorgestellt.

Unterschiedliche Spinzustände, zwischen denen ein Umschalten untersucht wird, werden dabei durch unterschiedliche Temperaturen des Spinsystems präpariert. Das Aufheizen des Spinensembles der magnetischen Mn-Ionen wird zuerst in statischen Experimenten untersucht und erfolgt über die optische Anregung von Ladungsträgern. Diese Untersuchungen dienen gleichzeitig zur Kalibrierung der Spintemperatur, die abhängig von der Intensität des Anregungslasers ist. Besonderes Augenmerk wird daneben auf den Mechanismus des Spinheizens gelegt, da dieser in der Literatur intensiv diskutiert wird [114, 115]. Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten QP-Strukturen kann dazu eindeutig Stellung bezogen werden (siehe Kapitel 5.5.1).

5.5.1 Photoinduziertes Heizen

Bei stationärer optischer Anregung der semimagnetischen QP bestimmt der Energiefluss die Temperatur T_S des Mn-Spinsystems und die Phonon-Temperatur T_P des Gitters. Die möglichen Relaxationspfade werden beschrieben durch die Relaxation der optisch angeregten Ladungsträger und der Spin-Gitter-Relaxationszeit. Ziel dieses Kapitels ist eine systematische Untersuchung der Spintemperatur in Abhängigkeit der Mn-Konzentration, da bekannt ist, dass τ_{SLR} stark von x abhängt. Dazu stehen zwei Proben mit $x = 0.03$ bzw. $x = 0.07$ zur Verfügung.

Verschiedene Mechanismen werden zurzeit für die Aufheizung des Mn-Spinsystems mit optisch angeregten Ladungsträgern diskutiert. In semimagnetischen Heterostrukturen bei tiefen Temperaturen sind zwei relevant:

- Zum einen der direkte Spin-Transfer von den Ladungsträgern auf die

Mn-Ionen mittels der (s,p)-d Wechselwirkung [115, 113, 102], wobei bekannt ist, dass der Prozess in Anwesenheit eines Gases freier Ladungsträger, z.B. eines 2DEG¹⁴ beschleunigt werden kann [116, 117]. Durch den direkten Spinumklapp-Austausch kommt es zu einer direkten Erwärmung des Mangan Spinsystems. Ein möglicher Temperaturunterschied wird bestimmt von den Relaxationsraten. Experimentell wurden so Temperaturen des Spinsystems von $T_S = 42$ K realisiert, während sich die Probe im flüssigen Heliumbad befindet. Das stärkere Aufheizen der Mn-Spins wird mit der langsamen Spin-Gitter-Relaxation erklärt [115].

- Der zweite Mechanismus ist der Energietransfer über Phononen des Halbleitergitters, die durch die Relaxation der optisch erzeugten Ladungsträger entstehen [114, 111]. In diesem Fall heizt sich das Gitter sofort mit auf und am Ort der Quantenpunktschicht gilt im stationären Fall $T_P = T_S$. Die beiden Relaxationskanäle sind im Diagramm 5.7 skizziert. Wie im Folgenden diskutiert wird, lassen sich beide Mechanismen aufgrund ihrer Abhängigkeit von der Anzahl der optisch erzeugten Ladungsträger unterscheiden.

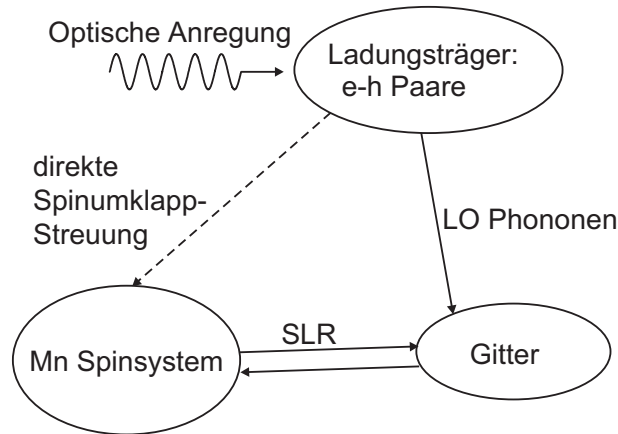


Abbildung 5.7: Mögliche Pfade und Mechanismen der Energierelaxation von optisch angeregten Ladungsträgern zum Mn-Spinsystem.

Ausgangspunkt der experimentellen Realisierung ist die Tatsache, dass die Zeemanverschiebung bei angelegtem externen Magnetfeld stark von der Anregungsintensität abhängt. Die Energieposition E_X des PL-Maximums bei

¹⁴zweidimensionales Elektronengas

gegebener externer Magnetfeldstärke wird in Abhängigkeit von der Anregungsdichte bestimmt. Die relative Verschiebung ΔE_X ist nach Gl. (5.5) abhängig vom mittleren Spin $\langle s_z \rangle$. Aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Brillouinfunktion kann daher die Energieposition im Magnetfeld anhand eines Zusammenhanges $E_X(T_S)$ in eine Spintemperatur übersetzt werden. Die PL des QP-Ensembles dient daher als ein Monitor bzw. ein Thermometer für die Temperatur des Mn-Spinensembles.

Die optische Anregung erfolgt in der Barriere resonant zum freien Exziton von ZnSe: $\hbar\omega_{\text{exc}} = E_{X,\text{ZnSe}}$. Das führt zu einer effizienten Anregung von Elektron-Loch Paaren in unmittelbarer Nähe zur QP-Schicht. Der hohe Absorptionskoeffizient beschränkt das Heizen in z -Richtung auf eine Tiefe von ca. 100 nm und führt damit zu einem lokal sehr beschränkten Heizen des Mn-Spinsystems. Darüber hinaus kann ein Einfluss des Substrats minimiert werden, weil die Eindringtiefe der Anregung sehr gering ist. Um eine eventuelle laterale Wärmediffusion zu minimieren, werden die Proben von einem relativ großen Laserspot mit einem Durchmesser $\phi \approx 200\mu\text{m}$ angeregt.

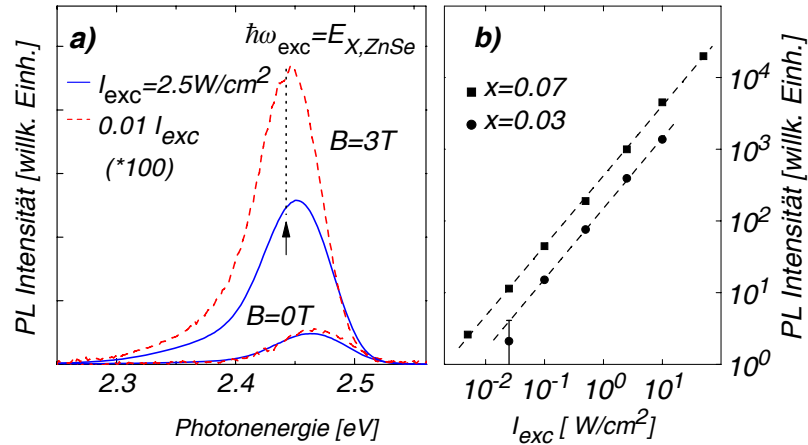


Abbildung 5.8: a) PL eines Ensembles semimagnetischer Quantenpunkte ($x = 0.07$) bei $B = 0\text{ T}$ und $B = 3\text{ T}$ für zwei unterschiedliche Anregungsintensitäten. b) PL-Intensität bei $B = 0\text{ T}$ in Abhängigkeit von der Anregungsintensität I_{exc} für zwei QP-Proben mit unterschiedlichem Mn-Gehalt.

In Abb. 5.8 sind die Energieposition der PL bei $B = 0\text{ T}$ und $B = 3\text{ T}$ für zwei unterschiedliche Anregungsintensitäten dargestellt. Die beiden Kurven für $B = 0\text{ T}$ im Teil a) der Abbildung (links) zeigen eine lineare Abhängigkeit der PL-Intensität von der Anregungsintensität. Bei einer Anregungsintensität von $0.01 I_{\text{exc}}$ sinkt auch die PL-Intensität auf den hundertsten Teil. Der Effekt ist über vier Größenordnungen linear und in Abbildung 5.8 b)

für die beiden untersuchten Proben aufgetragen. Eine Energieverschiebung des Maximums ist von untergeordneter Rolle. Wie in Abb. 5.1 verbleibt für $B > 0$ nur die σ^+ -polarisierte Komponente der PL. In diesem Fall zeigt sich, dass, wie oben angesprochen, der Betrag der Energieverschiebung von der Anregungsintensität abhängt, ebenso wie die Quantenausbeute¹⁵. Demnach verändert sich die Magnetisierung des Mn-Systems.

Es erscheint prinzipiell möglich, dass – über den in Kap. 5.1 eingeführten nicht-strahlenden Transfer zu inneren Mn-Übergängen – mit zunehmender Anregungsintensität ein wesentlicher Teil der angeregten Mn-Zustände besetzt wird, was die reduzierte Magnetisierung erklären könnte. Dies kann jedoch durch die eben gezeigte lineare Abhängigkeit für das hier betrachtete Intervall der Anregungsintensität von $I_{exc} = 0.005 \dots 50 \text{ W/cm}^2$ für beide Proben ausgeschlossen werden. Eine wesentliche Besetzung der angeregten Mn-Zustände würde zu einer superlinearen Abhängigkeit der PL-Intensität von I_{exc} führen, weil durch die bereits besetzten angeregten Zustände die Energierelaxation über den nichtstrahlenden Transfer zunehmend sättigt. Statt dessen kann die unterschiedliche Magnetisierung durch eine unterschiedliche Temperatur des Mn-Spinsystems erklärt werden.

Im Folgenden wird die Änderung der Magnetisierung mit unterschiedlicher Anregungsintensität systematisch gemessen und interpretiert. Ein genaues Verständnis ist auch für die im nächsten Kapitel präsentierten zeitaufgelösten Experimente wichtig. Da festgestellt wurde, dass als Ursache eine angeregte Besetzung höherenergetischer Zustände des Mn von untergeordneter Rolle ist, können die Messergebnisse mit der Formel (5.5) für die magnetfeldabhängige Energieverschiebung interpretiert werden.

In Abbildung 5.9 sind die Maxima der PL-Bande über dem externen Magnetfeld für vier unterschiedliche Anregungsintensitäten aufgetragen. Die Proben sind bei diesen Messungen vollständig von einem Bad aus supraflui- dem Helium ($T_B = 1.6 \text{ K}$) mit gutem Wärmekontakt umspült. Durch die Photo-Absorption haben die Ladungsträger eine Exzessenergie von $\approx 0.3 \text{ eV}$. Kleinere Abweichungen der Energiepositionen der PL-Maxima bei $B = 0$ für unterschiedliche Anregungsintensitäten lassen sich möglicherweise mit einer starken Temperaturabhängigkeit der Bandkante semimagnetischer Halbleiter erklären [31]. Die Messwerte für kleine Magnetfelder sind hier generell mit einem größeren Fehler behaftet, da die PL-Intensitäten kleiner und damit die Maxima schwerer zu bestimmen sind. Bei der Anpassung der Messdaten werden deshalb die Werte bei größeren Magnetfeldern stärker gewichtet. Die Materialparameter sind dieselben wie in Kap. 5.3, für die effektive Mangan-

¹⁵Letzterer Effekt wird bei den Dynamik-Untersuchungen im nächsten Kapitel ausgenutzt.

konzentration wird $x_{eff} = xr_{3ML}(x)$ verwendet.

Der für die Anpassung erforderliche phänomenologische Parameter $T_0(x)$ wird aus Magneto-PL-Messungen bestimmt, bei denen mit $\hbar\omega_{exc} = 2.75\text{eV}$ angeregt wird. Die Anregung unterhalb der Bandkante führt zu einer deutlich reduzierten Absorption und damit zu einem geringeren Aufheizen. Für die beiden kleinsten verwendeten Anregungsintensitäten $I_{exc} = 0.025$ bzw. 0.1 W/cm^2 ergibt sich beim Anpassen der Messdaten dieselbe effektive Temperatur $T_0 + T_S$, daraus kann geschlossen werden, dass hier noch kein Heizen erfolgt und die Spintemperatur mit der Gittertemperatur identisch ist: $T_S = T_B$. Es zeigt sich, dass die so ermittelten Werte $T_0 \approx 3.0\text{ K}$ für $x = 0.07$ und $T_0 \approx 1.5\text{ K}$ für $x = 0.03$ gut mit Werten für $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ Quantengraben übereinstimmen [115].

Der Magnetfeldchart wird für jede Anregungsintensität mit konstantem Wert für T_0 mit der Temperatur T_S als Fitparameter angepasst. Im rechten Teil der Abbildung 5.9 sind die so gewonnenen Spintemperaturen gegen die Anregungsintensität aufgetragen. Es ergibt sich ein monotoner Anstieg mit zunehmendem I_{exc} . Die etwas kleinere Heizeffizienz der QP-Probe mit $x = 0.03$ liegt in einer größeren Anzahl von Donator-Akzeptor-Paaren in der ZnSe-Barriere begründet. Diese absorbieren im Vergleich zur $x = 0.07$ Probe etwas stärker in der Deckschicht, was zu einem verminderten Energietransfer in die QP-Schicht führt. Dafür spricht die beobachtete, relativ große PL von Donator-Akzeptor-Paaren und die kleinere PL-Ausbeute der semimagnetischen QP im Vergleich zur Probe mit $x = 0.07$.

Aus der Abhängigkeit der Spintemperatur T_S von der Anregungsintensität I_{exc} kann auf den spezifischen Aufheizprozess geschlossen werden, denn diese unterscheiden sich durch ihre Intensitätsabhängigkeit. Im Falle eines direkten Transfers ist eine Aufheizung des Mn-Spinsystems proportional zur Anregungsintensität, d.h. $\Delta T_S \propto I_{exc}$, zu erwarten, weil die Anzahl angeregter Mn-Spins proportional zur Anzahl der zur Verfügung stehenden Ladungsträger ist.

Wie Abb. 5.9 zeigt, ist offensichtlich die gemessene Temperaturänderung *nicht* proportional zur Anregungsintensität. Dagegen zeigt sich, dass das Aufheizen einer Relation

$$T_S^4 - T_B^4 \propto I_{exc} \quad (5.10)$$

folgt (siehe gefittete Funktion in Abb. 5.9). Diese Beziehung ist charakteristisch für einen diffusiven Wärmetransport von der heißen angeregten Region zur kälteren Umgebung. Das Problem kann durch ein 1D-Modell approximiert werden. Durch die im Vergleich zur Eindringtiefe ($\approx 100\text{ nm}$) große Bestrahlungsfläche wird der laterale Wärmeffluss vernachlässigbar. Das Modell entspricht einer dünnen Scheibe, deren eine Stirnfläche bei $z = 0$ auf

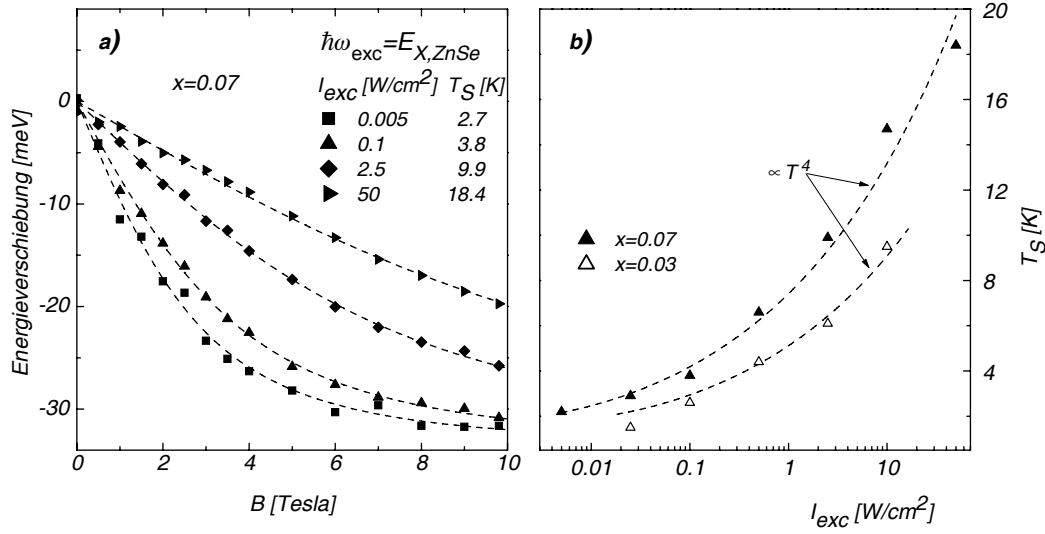


Abbildung 5.9: a) Relative Energieverschiebung des PL-Maximums in Abhängigkeit vom Magnetfeld für unterschiedliche Anregungsintensitäten. Linien: Fit nach Gl. (5.5) b) Ermittelte Spintemperaturen in Abhängigkeit von der Anregungsintensität, oben $x = 0.07$, unten $x = 0.03$. Linien: Fit nach Gl. (5.10).

konstanter Temperatur T_B des Heliumbades gelassen wird. Die andere Seite der Scheibe entspricht der QP-Schicht mit δ -förmiger Wärmequelle. Die Relation folgt aus der Lösung der stationären eindimensionalen Wärmeleichung für die Gittertemperatur, bei der $T_P = T_S$ angesetzt ist [114]:

$$\frac{\partial}{\partial z} \lambda(T) \frac{\partial T}{\partial z} = c * I_{\text{exc}} \delta(z - a). \quad (5.11)$$

Die QP-Schicht befindet sich bei $z_{\text{QP}} = a$. Bei tiefen Temperaturen ($T \leq 20\text{K}$) ist die Wärmeleitfähigkeit λ proportional zur spezifischen Wärmekapazität ($c = \text{Proportionalitätsfaktor}$). Diese ist bei tiefen Temperaturen selbst abhängig von der Temperatur. Gemäß der Debye Näherung für Gitterschwingungen gilt daher $\lambda \propto T^3$, was eingesetzt in die Wärmeleichung die Beziehung (5.10) liefert und auf eine dominante Rolle von Phononen beim Aufheizprozess hindeutet. Demzufolge wird bei allen stationären Messungen die gleiche Temperatur zwischen Gitter und Mn-Spinsystem angenommen, was die obige Annahme $T_S = T_P$ rechtfertigt.

Die Spintemperatur kann durch die so etablierten Beziehungen zur Anregungsintensität bestimmt werden. Man erhält eine Kalibrierung $T_S(I_{\text{exc}})$, mit der sich einer gegebenen Anregungsintensität eine Spintemperatur zuordnen lässt. Alle folgenden zeitaufgelösten Messungen werden mit der Energie

$\hbar\omega_{\text{exc}} = E_{X,\text{ZnSe}}$ angeregt.

5.5.2 Spin-Gitter-Relaxation

Nachdem geklärt ist, dass Phononen in der Energierelaxation vom Gitter zum Mn-Spinsystem eine große Rolle spielen, geht es nun sowohl um die Zeitskala, auf der sich die Relaxation zwischen Gitter und Mn-Spins abspielt, als auch um den spezifischen Prozess, der für die Spin-Gitter-Relaxation verantwortlich ist. Allgemein gibt es drei wichtige Prozesse, die bei der Spin-Gitter-Relaxation eine Rolle spielen und die sich z.B. durch ihr Temperaturverhalten identifizieren lassen [118]:

$$\tau_{\text{SLR}} = \alpha \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) + \beta T^n + \frac{\gamma}{\exp(\Delta/k_B T) - 1}.$$

Der erste Term beschreibt dabei den resonanten Prozess über Phononen, die genau die Übergangsenergie $\hbar\omega$ zwischen zwei Spinniveaus haben. Der zweite Term beschreibt einen Raman-Prozess, die Exponenten n liegen typischerweise zwischen 5 und 9. Der dritte Prozess beschreibt einen so genannten Orbachprozess [119].

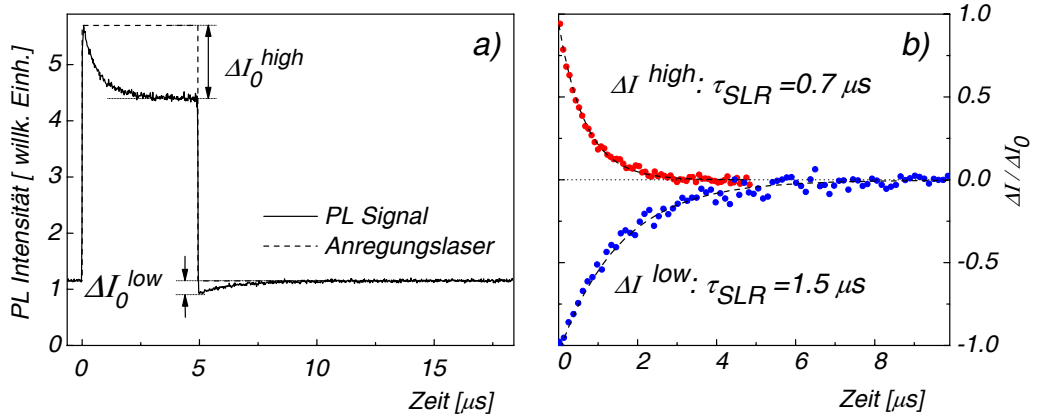


Abbildung 5.10: Links: zeitaufgelöstes PL-Spektrum der semimagnetischen QP. Rechts: Vergleich zwischen Abkühlungs- (blau) und Aufheizprozess (rot).

Der Abstand der Spin-Niveaus ändert sich mit der Stärke des angelegten Magnetfeldes. Deshalb ist neben der aus der Formel ersichtlichen starken Temperaturabhängigkeit auch das Magnetfeld ein Messparameter. Als dritter Messparameter dient die Mn-Konzentration, wieder realisiert durch die zwei identisch gewachsenen QP-Proben, an denen auch die stationären Messungen durchgeführt wurden. Es ist bekannt, dass einzelne isolierte Mn-Ionen

nicht mit dem Gitter koppeln. Mögliche Relaxationsmechanismen müssen daher Mn-Paare bzw. mehratomige Cluster berücksichtigen. Die Bildungswahrscheinlichkeit solcher Cluster hängt stark von der Mn-Konzentration ab, was sich in der Spin-Gitter-Relaxationszeit niederschlägt.

Für die Experimente wird wie im vorigen Kapitel der Anregungsfleck des Lasers mit einem Durchmesser von $\phi \approx 200 \mu\text{m}$ so groß gewählt, dass laterale Diffusion von untergeordneter Rolle ist. Die PL der semimagnetischen QP dient als Monitor für die Spintemperatur T_S . Um das zeittransiente Verhalten von T_S aufzuzeichnen, wird die PL an der niederenergetischen Seite knapp unterhalb ihres Maximums detektiert. Die entsprechende Position ist in Abb. 5.8 durch einen Pfeil gekennzeichnet. An dieser Stelle ist die Messempfindlichkeit am größten, da die Zeemanverschiebung und die Quantenausbeute beide in dieselbe Richtung zur Signalveränderung beitragen: Bei Erhöhung von T_S verschiebt sich das Maximum zu höheren Energien, die PL-Ausbeute sinkt auf der niederenergetischen Seite des Maximums, verstärkt durch die geringere Quantenausbeute bei höheren Spintemperaturen. Die spektrale Breite des detektierten Bereichs ist mit $< 1 \text{ meV}$ klein gegen die Breite der Ensemble-PL. Solange die Änderung der PL-Intensität $\Delta I(t)_{\text{PL}}$ klein ist gegen die Gesamtintensität $I(t)_{\text{PL}}$, folgt sie in erster Näherung direkt der Änderung der Spintemperatur:

$$-\Delta I(t)_{\text{PL}} \propto \Delta T_S(t). \quad (5.12)$$

In Abb. 5.10 sind exemplarisch die PL-Transienten für die Probe mit $x = 0.07$ bei $B = 3 \text{ T}$ dargestellt. Zum Zeitpunkt $t = 0$ wird die Anregungsintensität mit Hilfe des akusto-optischen Modulators (siehe Kap. 3.2.1) umgeschaltet von I_{low} nach I_{high} . In Übereinstimmung mit der strikt linearen Abhängigkeit von der Anregungsintensität erhöht sich die PL-Intensität ebenfalls um den Faktor $I_{\text{high}}/I_{\text{low}} = 5 : 1$. Da die exzitronische Lebensdauer kürzer ist als 10 ps kann ein entsprechender Anstieg des Signals mit diesem Messaufbau nicht aufgelöst werden. Während der Phase der hohen Anregungsintensität I_{high} bei $0 < t < 5 \mu\text{s}$, fällt die PL-Intensität kontinuierlich auf ein tieferes Niveau aufgrund der Spinaufheizung, die, wie schon erwähnt, eine Verschiebung der PL-Bande als auch eine Änderung der Quantenausbeute bewirkt. Der entgegen gesetzte Effekt tritt auf, nachdem die Anregung wieder auf die Intensität I_{low} zurückgeschaltet wird. Bei $t = 5 \mu\text{s}$ fällt die PL-Intensität instantan um den Faktor $I_{\text{high}}/I_{\text{low}}$ und wächst anschließend wieder an aufgrund der Abkühlung des Spinsystems. Die Dauer des Impulses und das beobachtete Zeitfenster werden so gewählt, dass in beiden Fällen I_{high} und I_{low} ein neuer Gleichgewichtszustand erreicht wird. Wie Abb. 5.10 b) zeigt, folgen die Transienten beim Heizen als auch beim Abkühlen einem

einfach exponentiellen Verhalten mit einer Zeitkonstanten τ_{SLR} ¹⁶. Die Zeiten liegen im μs -Bereich. Hinweise auf ein – wie in der Literatur berichtet – nicht-exponentielles Verhalten der Spin-Gitter-Relaxation auf ms-Zeitskala findet sich an den hier untersuchten QP-Strukturen nicht [98]. Auch beim Ausdehnen des Zeitfensters auf 100 μs wurde an den hier betrachteten QP-Strukturen kein Anzeichen für eine lange, nicht-exponentielle Komponente der Spin-Gitter-Relaxation gefunden.

Man erkennt in Abb. 5.10 b) weiter, dass der Heizprozess ca. einen Faktor zwei schneller verläuft als der Abkühlprozess¹⁷. Dies kann durch unterschiedliche Mechanismen oder durch eine Temperaturabhängigkeit der Spin-Gitter-Relaxationsrate ($1/\tau_{SLR}$) bedingt sein. Um dies zu überprüfen, wurde τ_{SLR} für verschiedene Kombinationen von I_{low} und I_{high} gemessen.

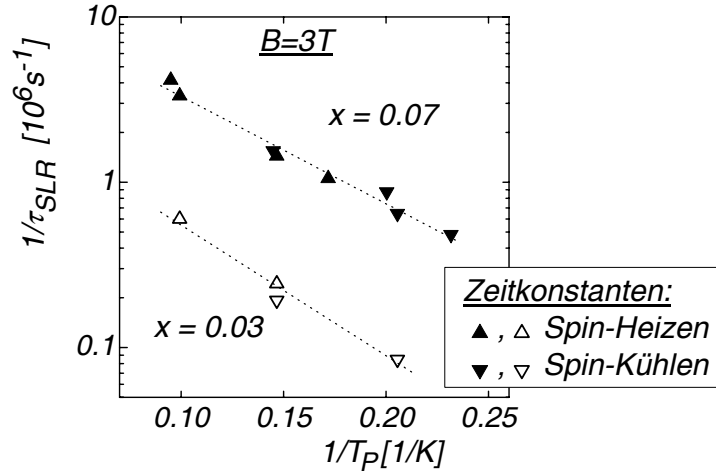


Abbildung 5.11: Abhängigkeit der Spin-Gitter-Relaxationsrate von der inversen Temperatur für zwei QP-Proben unterschiedlichen Mn-Gehalts.

In Abb. 5.11 wird deutlich, dass dem Aufheiz- und dem Abkühlvorgang derselbe Mechanismus zugrunde liegt. Hier sind die ermittelten SLR-Raten gegen die inverse Gittertemperatur $1/T_P$ aufgetragen. Letztere stammen aus der Relation $T_P = T_S(I_{exc})$ aus Abb. 5.9 b). Die Tatsache, dass es sich während der Phasen hoher und niedriger Anregungsintensitäten I_{low} und I_{high} um unterschiedliche Gittertemperaturen handelt, wird weiter unten erläutert. Man kann erkennen, dass die Raten für Abkühlung und Aufheizen des Spins praktisch übereinstimmen, sobald sie auf dieselbe Temperatur T_P ka-

¹⁶engl.: SLR = spin lattice relaxation

¹⁷Beim gewählten Verhältnis $I_{high}/I_{low} = 5$

libriert werden. In beiden Proben wird dieselbe exponentielle Abhängigkeit

$$\ln(\tau_{SLR}^{-1}) \propto T_P^{-1}$$

beobachtet. Dies ist ein weiterer Nachweis dafür, dass ein direkter Heizprozess von den angeregten Ladungsträgern zu den Mn-Spins nur eine untergeordnete Rolle spielt, denn in diesem Fall würde man für $1/\tau_{SLR}$ eine lineare Funktion der Anregungsintensität erwarten. Die Rate wäre direkt proportional zur Anzahl der Ladungsträger, die für einen Spinumklapp-Austausch zur Verfügung stünde.

Bei der Probe mit $x = 0.03$ liegen die Werte für τ_{SLR}^{-1} ca. eine Größenordnung unter denen der Probe mit $x = 0.07$, die SLR verläuft also langsamer bei einem geringeren Mn-Gehalt. Hierdurch ist bewiesen, dass die beobachteten Zeiten der Spindynamik entsprechen und nicht der Gitterdynamik. Während sich die Mn-Konzentration zwischen den beiden Proben lediglich um den Faktor ≈ 2 unterscheidet, liegen die gemessenen SLR-Zeiten nahezu eine Größenordnung auseinander. Diese hochsensible Abhängigkeit von x wurde auch von anderen Gruppen an Quantengraben gefunden [113] und zeigt die Bedeutung von Mn-Paaren bzw. Cluster für den Relaxationsmechanismus auf. Extrapoliert man die Werte zu Temperaturen von 1.6 K, was der Temperatur des Heliumbades entspricht, liegen die Werte nur unerheblich unter denen, die an Quantengraben gleicher Mn-Konzentration bei eben dieser Temperatur gemessen wurden [113, 110].

Zur Überprüfung, ob die SLR selbst von der Spintemperatur abhängt, wird in einem zusätzlichen Experiment I_{high}/I_{low} , der Quotient der Intensitäten, auf 25 vergrößert. Dadurch heizt sich das Spinsystem während der hohen Anregungsintensität stärker auf. In diesem Falle sollte sich eine nicht-exponentielle Relaxation ergeben. Wie aus Grafik 5.12 hervorgeht, ist auch im Fall großer Temperaturänderung der Relaxationsprozess einfach exponentiell anzufitten. Die beiden dargestellten Zeitkonstanten beim Abkühlen unterscheiden sich nur unwesentlich voneinander. Die Relaxationsrate hängt demnach weder von der Spintemperatur selbst noch davon ab, wie stark das Spinsystem vorher aufgeheizt wird, sondern vereinfacht gesprochen nur von der Umgebungstemperatur T_P des Gitters. Die so eindeutig bestimmte Dynamik von Phononen- und Spintemperatur sind zur Veranschaulichung in Abb.5.13 skizziert.

Beide Richtungen der Energiedissipation, d.h. Aufheizen und Abkühlen des Mn-Spins folgen derselben Abhängigkeit von der inversen Temperatur, deshalb liegt ihnen derselbe Mechanismus zugrunde. Mehrere experimentelle Fakten legen deshalb ein Szenario nahe, bei dem eine Phonontemperatur T_P im QP sich sehr schnell (beim Umschalten) einstellt und dann die

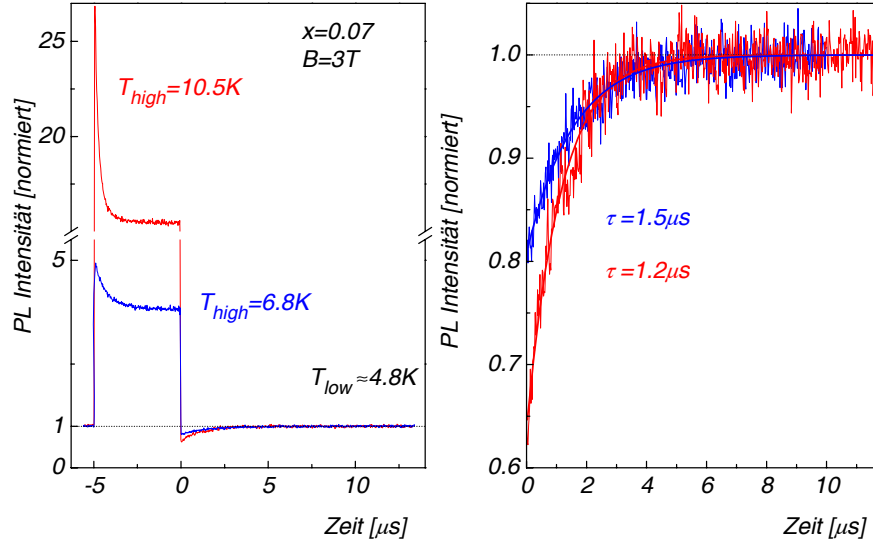


Abbildung 5.12: Links: Vergleich zweier PL-Transienten für unterschiedlich starke Anregungsintensitäten I_{high} bei gleichem I_{low} . Rechts: Vergrößerter Ausschnitt der Abkühltransienten zum Vergleich. Die Relaxationszeiten sind nahezu identisch.

Spintemperatur auf diesen neuen Gleichgewichtszustand nachfolgt. Zum ersten zeigt das einfach exponentielle Verhalten der Transienten, dass sich Phonon- und Spindynamik auf zwei voneinander gut getrennten Zeitskalen abspielen müssen. Zweitens zeigen die Abb. 5.12 sowie die Abhängigkeit τ_{SLR} von der Mn-Konzentration, dass sehr wohl Spindynamik und nicht Gitterdynamik gemessen wird. Drittens zeigt sich für stationäre Messungen wie schon erwähnt eine Phononenbeteiligung beim Aufheizen der Mn-Spins.

Die ermittelten Zeiten der Spin-Gitter-Relaxation setzen voraus, dass das Phononsystem seinen neuen Quasi-Gleichgewichtszustand beim Umschalten der Anregungsintensität auf einer Zeitskala kurz gegen $1 \mu s$ erreicht. Andernfalls wäre sie durch die zeitaufgelösten Messungen mit detektiert worden, was sich z.B. durch nicht einfach-exponentielles Abklingen geäußert hätte. Eine so schnelle Phonondynamik scheint überraschend, da im Vergleich dazu an Volumenhalbleitern merklich längere Thermalisierungszeiten festgestellt wurden [120]. In den hier vorliegenden semimagnetischen QP-Strukturen spielen dagegen zusätzlich Verspannungen, Durchmischung und die Stranski-Krastanov-Morphologie eine Rolle, das könnte zu einer erhöhten anharmonischen Kopplung von Phononmoden beitragen, die zu einer schnelleren Dynamik führen. Es wird daher für das Gitter von einem sich sehr schnell einstellenden thermischen Gleichgewicht ausgegangen, so dass

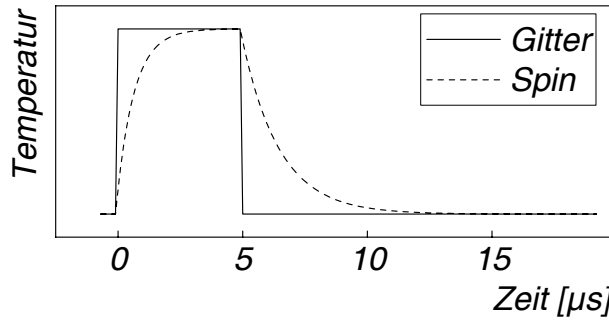


Abbildung 5.13: Schema der Dynamik von Phonon- (durchgehend) und Spin-temperatur (gestrichelt).

die Bezeichnung Gitter- bzw. Phonontemperatur weiter verwendet wird. Eine weitere Untersuchung der Phonodynamik ist nicht Gegenstand dieser Arbeit.

Anschließend an die Präsentation der Zeitskalen für die Dynamik der Spin- bzw. Gittertemperatur geht es nun um den spezifischen Prozess, der zur Relaxation der Mn-Spins führt. Der Beitrag isolierter Mn-Ionen zur Spin-Gitter-Relaxation kann bei den hier betrachteten Zeitskalen vernachlässigt werden, da diese nicht direkt an das Phononsystem koppeln. Ein einzelnes Mn-Ion hat kein Bahndrehmoment ($L_{\text{Mn}} = 0$), deshalb gibt es keine Spin-Bahn-Wechselwirkung, die die aufgrund der Übergangsregeln verbotene Kopplung zwischen Phononen und einzelnen Spins erlauben würde [118]. In Mn-Clustern aus zwei oder mehr benachbarten und gekoppelten Mn-Ionen ist die Spinerhaltung aufgrund der Dzyaloshinski-Moriya-Austauschwechselwirkung aufgehoben [121, 122]. Cluster können daher über kreuzweisen Spinaustausch die überschüssigen Spins angeregter isolierter Mn-Ionen aufnehmen. Dieser Prozess verläuft sehr schnell. Die Tatsache, dass $1/\tau_{\text{SLR}}$ sich fast eine Größenordnung ändert, während sich x gerade einmal um den Faktor zwei ändert, steht im Einklang mit diesem Konzept, da sich die Anzahl der Cluster stark mit der Mn-Konzentration ändert [35, 107]. Für Volumenkristalle erbrachte eine Berechnung der Relaxationskanäle des Orbach-Prozesses [119, 118], dass hier die effektivste Relaxation an Mn-Triaden stattfindet zwischen deren Grund- ($S = 5/2$) und dem ersten angeregten Zustand ($S = 3/2, 7/2$) [35]. Jedoch ist wegen der benötigten Phononenergien dieser Prozess erst ab höheren Temperaturen effektiv ($T_P > 10$ K). Zudem liegt die Wahrscheinlichkeit für Mn-Triaden in einem QP bei etwa $1/7$ der Wahrscheinlichkeit, dass sich Paare im QP befinden [107].

Der Steigung der Ausgleichsgeraden in Abb. 5.11 entnimmt man eine Aktivierungsenergie von $\Delta = 1.3$ meV für beide Mangankonzentrationen. Der

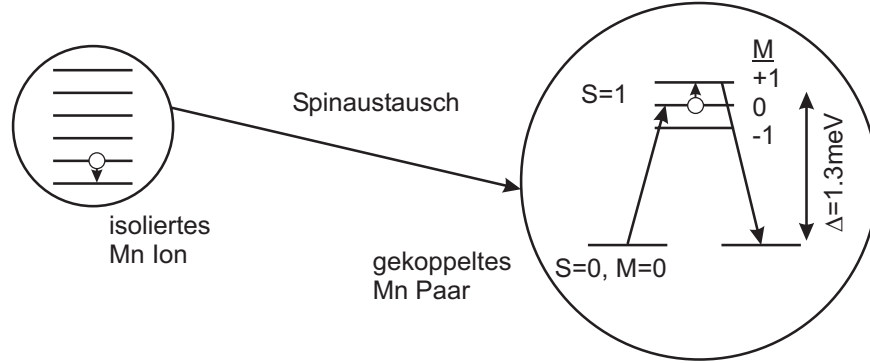


Abbildung 5.14: Schema SLR-Prozess: Spinaustausch mit Mn-Paar und Relaxation via modifiziertem Orbach-Prozess.

Wert von Δ passt sehr gut zum Zweifachen der Austauschenergie antiferromagnetisch gekoppelter Mn-Paare, $2k_B J_1 = 1.4 \text{ meV}$ in (Cd,Mn)Se [123]. Dieser Wert beschreibt die Aufspaltung zwischen Grundzustand ($S = 0$) und erstem angeregten Zustand ($S = 1$) von Mn-Paaren auf Nächsten-Nachbar-Plätzen. Daher spielen diese Paare bei der Spin-Gitter-Relaxation der hier untersuchten QP eine dominante Rolle. Der Prozess ist in Abb. 5.14 skizziert.

Der Grundzustand des Mn-Paares mit $S = 0$ ist inaktiv für einen Spintransfer, deshalb bietet sich zur Spinrelaxation ein modifizierter Orbach-Prozess an, dessen Ausgangspunkt der erste angeregte Zustand des Mn-Paares ($S = 1, M = 0$) ist. Der Spin eines isolierten Mn-Ions kann ohne Energieänderung an diesen Zustand ausgetauscht werden, wobei sich letzterer auf $M = 1$ erhöht beim Abkühlen des isolierten Ions bzw. auf $M = -1$ erniedrigt beim Heizen des isolierten Ions. Nachfolgend wird der Spin im Paar abgebaut durch Relaxation in den Grundzustand $S = 0$ über eine Phonon-Emission, diese Kopplung ist durch den Dzyaloshinski-Moriya-Austausch möglich [124]. Die Rate dieses Prozesses kombiniert die Boltzmann-Besetzung des Eingangszustandes ($S = 1, M = 0$) und den Phonon-Emissionsfaktor¹⁸:

$$1/\tau_{SLR} \propto \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T_P}\right) \left[\left(\exp\left(\frac{\Delta}{k_B T_P}\right) - 1 \right)^{-1} + 1 \right] \\ = 1 / \left(\exp\left(\frac{\Delta}{k_B T_P}\right) - 1 \right). \quad (5.13)$$

Dieser Ausdruck liefert dieselbe Temperaturabhängigkeit wie der originale Orbach-Prozess und erklärt sehr gut die Beobachtung einer exponenti-

¹⁸Bei dieser Betrachtung werden die Zeeman-Energien zwischen $M = 0$ und $M = \pm 1$ bei endlichem B vernachlässigt

ellen Abhängigkeit der Spin-Gitter-Relaxationsrate im Temperaturbereich $k_B T_P < \Delta$, der durch diese Messungen abgedeckt ist.

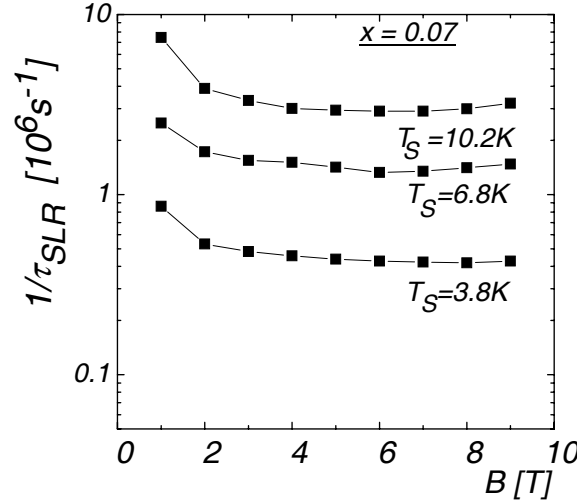


Abbildung 5.15: Magnetfeldabhängigkeit der SLR für $x = 0.07$ bei drei verschiedenen Gittertemperaturen.

In Abb. 5.15 erkennt man, dass die SLR-Rate nur schwach von der Stärke des externen Magnetfelds abhängt. Die Tatsache, dass die Kurven für unterschiedliche Temperaturen fast vertikal gegeneinander verschoben sind, spricht dafür, dass die Aktivierungsenergie Δ in erster Näherung keine Funktion des Magnetfeldes ist. Der Anstieg um einen Faktor zwei von $1/\tau_{SLR}$ für kleine Feldstärken ($B = 1$ T) ist zurzeit unklar. Er wurde auch in anderen Gruppen beobachtet [112, 125]. Die d-d Austauschkonstante für Mn-Paare auf Übernächste-Nachbarn-Plätze beträgt in CdMnSe $J_2 \approx 2$ K [126]. Das bedeutet, bei einem Magnetfeld $B_2 = k_B J_2 / \mu_B g_{\text{Mn}}$ kreuzt der $S = 1, M = -1$ Zustand des Übernächste-Nachbarn Mn-Paares den Grundzustand $S = 0, M = 0$. Im Bereich kleiner Magnetfeldstärken um $B = B_2 \approx 1.5$ T erscheint daher eine Beschleunigung der SLR durch entfernte Paare möglich. Die Anzahl der Mn-Paare auf Nächste-Nachbar-Plätzen und auf Übernächste-Nachbar-Plätzen ist zudem vergleichbar¹⁹ [127]. Allgemein können Wechselwirkungen zwischen Mn-Clustern, bei denen die Zeeman-Aufspaltung bei kleinen Magnetfeldern vergleichbar der d-d Austauschenergien entfernter Nachbarn ist, ebenso beitragen.

¹⁹Hierbei wurden die Grenzflächen vernachlässigt.

Kapitel 6

Zusammenfassung

In dieser Arbeit werden schwerpunktmäßig einzelne Quantenpunkte auf der Basis von II-VI Halbleitern untersucht. Im Mittelpunkt stehen dabei die Wechselwirkung der eingesperrten Ladungsträger untereinander als auch mit ihrer Umgebung. Negativ geladene Quantenpunkte bieten die Möglichkeit, den Spin einzelner Ladungsträger unabhängig voneinander zu untersuchen. Indem sich die Spins der beiden beteiligten Elektronen kompensieren, kann das Loch einzeln untersucht werden. Die komplexe Struktur des Valenzbandes führt zu Kopplungen zwischen schweren und leichten Löchern und zu spinabhängigen Polarisationsseigenschaften des Lochspektrums. Die Kopplung kann hier mithilfe der Anregungsspektroskopie neben dem Grundzustand auch im ersten angeregten Lochzustand nachgewiesen und untersucht werden.

Neben dem Loch können mit Hilfe einzelner Trionen auch die Spins residenter Elektronen analysiert und durch spinselektive Anregung höherer Zustände manipuliert werden. Über die Beteiligung des geladenen Biexzitons ist der Zugriff auf einen Trion-Zustand möglich, in dem ein Elektron die nächsthöhere Schale besetzt. Hier wirkt das Kramers-Theorem nicht mehr, nach dem Systeme mit halbzahligem Spin entartet sind. Die Elektronenspins kompensieren sich hier nicht und bieten die Möglichkeit, über die Analyse der Feinstruktur des Triplettzustands die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung zu untersuchen. Es zeigt sich, dass der anisotrope Anteil mit einem Elektron in der zweiten Schale sehr viel größer ist als im Grundzustand. Das führt zu einer starken Kopplung der Zustände und zu einem effektiven kombinierten Spinumklapp von Elektron und Loch im Triplettzustand. Letzterer kann zu einer gezielten Abfrage des Spinzustandes des residenten Elektrons ausgenutzt werden und liefert eine Möglichkeit, Spinzustände sowohl zu schreiben als auch – bei resonanter Anregung des Triplettzustands – zu lesen. Daneben kann ein weiterer Prozess identifiziert werden, in dem mithilfe von kaskadierter Photoabsorption in einem Quantenpunkt spin-selektiv das geladene

Biexziton erzeugt wird. Auch dieser Prozess führt zu einer negativen zirkularen Polarisation des PL-Signals des Grundzustandes und kann als Möglichkeit zur Spinmanipulation des residenten Elektrons betrachtet werden. In Verbindung mit dem Ansatz, den Spin als Informationseinheit zu betrachten, ist dies ein Konzept zur Umsetzung spintronischer Ideen in Halbleiter-Nanostrukturen.

Im zweiten Themenkomplex wird die Wechselwirkung spinpolarisierter Ladungsträger mit einer semimagnetischen Umgebung getestet. Durch das isoelektrische Einbringen von Mn in das Kation-Untergitter werden Wechselwirkungen mit deren halbgefüllter 3d-Elektronenschale etabliert. Diese führen zu einer Reihe von magneto-optischen Effekten. Der Riesen-Zeeman-Effekt kann als makroskopischer Effekt nachgewiesen werden. Einzelne Ladungsträgerspins, lokalisiert in Quantenpunkten, wechselwirken mit wenigen Mn-Ionen. Die Wellenfunktion der Ladungsträger ist dabei trotz der großen Einsperrungs-Energien in den Quantenpunkten noch so ausgedehnt gegenüber den δ -förmigen Wellenfunktionen der angeordneten Mn-Ionen, dass sich die Austauschkonstanten nicht von denen des Volumenhalbleiters unterscheiden. Die Wechselwirkung führt zu einer Verbreiterung der optischen Übergänge aufgrund von statistischen Spinfluktuationen. Eine Abhängigkeit der Linienbreite von der Mn-Konzentration kann konsistent erklärt werden. Aufgrund der Energiestruktur der Proben kann hier die Wechselwirkung mit einer ungestörten Mn-Umgebung untersucht werden. Die Ladungsträger testen die Spinumgebung, ohne diese auszurichten, es gibt keinen Exziton-Magneto-Polaron-Effekt.

Die Wechselwirkungen mit der semimagnetischen Umgebung reagieren empfindlich auf äußere Einflüsse wie die Temperatur. Der Riesen-Zeeman-Effekt bietet hier die Möglichkeit eines optischen Thermometers für die Spintemperatur.

Die Spin-Gitter-Relaxation bestimmt die Zeit, in der ein Ensemble von Mn-Spins sich inkohärent orientieren lässt. Es zeigt sich, dass ein Orbach-Prozess wesentlich für die Spindissipation ist. Typisch ist eine exponentielle Änderung der Relaxationsrate mit der Temperatur, ebenso wie eine starke Abhängigkeit von der Mn-Konzentration. Die Dissipation erfolgt über Mn-Paare, der Mechanismus ist hier unterschiedlich zum Volumenhalbleiter, wo der größte Beitrag durch Triaden erfolgt.

Sowohl nicht- als auch semimagnetische Nanostrukturen bergen großes Potential zum Studium spinabhängiger Phänomene einzelner Ladungsträger. Großer experimenteller Vorteil von Halbleiter-Quantenpunkten ist die Lokalisation innerhalb einer Matrix und damit die Adressierung bzw. Reproduzierbarkeit experimenteller Untersuchungen.

Literaturverzeichnis

- [1] OSTEN, H. J.: Materialien für die Miniaturisierung. In: *Physik Journal* 10 (2005), S. 43
- [2] BIMBERG, D. ; GRUNDMANN, M. ; LEDENTSOV, N. N.: *Quantum Dot Heterostructures*. Wiley, Chichester, 1999
- [3] FAFARD, S. ; HINZER, K. ; RAYMOND, S. ; DION, M. ; MCCAFFREY, J. ; FENG, Y. ; CHARBONNEAU, S.: Red-Emitting Semiconductor Quantum Dot Lasers. In: *Science* 274 (1996), S. 1350
- [4] KIRSTAEDTER, N. ; LEDENTSOV, N. N. ; GRUNDMANN, M. ; BIMBERG, D. ; USTINOV, V. M. ; RUVIMOV, S. S. ; MAXIMOV, M. V. ; KOP'EV, P. S. ; ALFEROV, Zh. I. ; RICHTER, U. ; WERNER, P. ; GÖSELE, U. ; HEYDENREICH, J.: Low threshold, large T_0 injection laser emission from (InGa)As quantum dots. In: *Electron. Lett.* 30 (1994), S. 1416
- [5] MICHLER, P. ; KIRAZ, A. ; BECHER, C. ; SCHOENFELD, W. V. ; PETROFF, P. M. ; ZHANG, L. ; HU, E. ; IMAMOĞLU, A.: A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device. In: *Science* 290 (2000), S. 2282
- [6] SANTORI, C. ; PELTON, M. ; SOLOMON, G. ; DALE, Y. ; YAMAMOTO, Y.: Triggered Single Photons from a Quantum Dot. In: *Phys. Rev. Lett.* 86 (2001), S. 1502
- [7] AICHELE, T. ; REINAUDI, G. ; BENSON, O.: Separating cascaded photons from a single quantum dot: Demonstration of multiplexed quantum cryptography. In: *Phys. Rev. B.* 70 (2004), S. 235329
- [8] SANTORI, C. ; FATTAL, D. ; S., Solomon G. ; VUCKOVIC, J. ; YAMAMOTO, Y.: Indistinguishable photons from a single-photon device. In: *Nature* 419 (2002), S. 594
- [9] POHL, U.W. ; PÖTSCHKE, K. ; SCHLIWA, A. ; GUFFARTH, F. ; BIMBERG, D. ; ZAKHAROV, N. D. ; WERNER, P. M. ; LIFSHITS, B. ; SHCHUKIN, V. A. ; JESSON, D. E.: Evolution of a multimodal distribution

- of self-organized InAs/GaAs quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 72 (2005), S. 245332
- [10] MURRAY, C. B. ; NORRIS, D. J. ; BAWENDI, M. G.: Synthesis and characterization of nearly monodisperse CdE (E = sulfur, selenium, tellurium) semiconductor nanocrystallites. In: *J. Am. Chem. Soc.* 115 (1993), S. 8706
 - [11] KASTNER, M.: Technology and the single electron. In: *Nature* 389 (1997), S. 667
 - [12] ASHOORI, R. C. ; STÖRMER, H. L. ; WEINER, J. S. ; PFEIFFER, L. N. ; PEARTON, S. J. ; BALDWIN, K.W. ; WEST, K. W.: Single-electron capacitance spectroscopy of discrete quantum levels. In: *Phys. Rev. Lett.* 68 (1992), S. 3088
 - [13] WARBURTON, R. J. ; SCHÄFLEIN, C. ; HAFT, D. ; BICKEL, F. ; LORKE, A. ; KARRAI, K. ; GARCIA, J. M. ; SCHOENFELD, W. ; PETROFF, P. M.: Optical emission from a charge-tunable quantum ring. In: *Nature* 405 (2000), S. 926
 - [14] KASTNER, M.: Artificial atoms. In: *Physics Today* 46 (1993), S. 24
 - [15] KULAKOVSKII, V.D. ; BACHER, G. ; WEIGAND, R. ; KÜMMELL, T. ; FORCHEL, A. ; BOROVITSKAYA, E. ; LEONARDI, K. ; HOMMEL, D.: Fine Structure of Biexciton Emission in Symmetric and Asymmetric CdSe/ZnSe Single Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett* 82 (1999), S. 1780
 - [16] EMPEDOCLES, S. A. ; BAWENDI, M. G.: Quantum-Confined Stark Effect in Single CdSe Nanocrystallite Quantum Dots. In: *Science* 278 (1997), S. 2114
 - [17] PAILLARD, M. ; MARIE, X. ; RENUCCI, P. ; AMAND, T. ; JBELI, A. ; GÉRARD, J. M.: Spin Relaxation Quenching in Semiconductor Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 86 (2001), S. 1634
 - [18] FLISSIKOWSKI, T. ; BETKE, A. ; AKIMOV, I.A. ; HENNEBERGER, F.: Two-Photon Coherent Control of a Single Quantum Dot. In: *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004), S. 227401
 - [19] FEYNMAN, R. F.: Quantum mechanical computers. In: *Opt. News* 11 (1985), S. 11

- [20] KNILL, E. ; LAFLAMME, R. ; MILBURN, G. J.: A scheme for efficient quantum computation with linear optics. In: *Nature* 409 (2001), S. 46
- [21] GAMMON, D. ; STEEL, D. G.: Optical Studies of Single Quantum Dots. In: *Physics Today* 55 (2002), S. 36
- [22] IMAMOĞLU, A. ; AWSCHALOM, D. D. ; BURKARD, G. ; DIVINCENZO, D. P. ; LOSS, D. ; SHERWIN, M. ; SMALL, A.: Quantum Information Processing Using Quantum Dot Spins and Cavity QED. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999), S. 4204
- [23] BACHER, G. ; SCHÖMIG, H. ; WELSCH, M.K. ; ZAITSEV, S. ; KULAKOVSKII, V.D. ; FORCHEL, A. ; LEE, S. ; DOBROWOLSKA, M. ; FURDYNA, J.K. ; KÖNIG, B. ; OSSAU, W.: Optical spectroscopy on individual CdSe/ZnMnSe quantum dots. In: *Appl. Phys. Lett.* 79 (2001), S. 524
- [24] MADELUNG, O. (Hrsg.): *Landoldt-Börnstein New Series, Group III. Bd. 17: Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology.* Springer, Heidelberg, 1982
- [25] IVCHENKO, E.L. ; PIKUS, G.E.: *Superlattices and Other Heterostructures.* Second edition. Springer, Berlin, 1997 (Solid State Sciences 110)
- [26] PULS, J. ; RABE, M. ; WÜNSCHE, H.-J. ; HENNEBERGER, F.: Magneto-optical study of the exciton fine structure in self-assembled CdSe quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 60 (1999), S. 16303
- [27] GAMMON, D. ; SNOW, E. S. ; SHANABROOK, B. V. ; KATZER, D. S. ; PARK, D.: Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 76 (1996), S. 3005
- [28] BAYER, M. ; ORTNER, G. ; STERN, O. ; KUTHER, A. ; GORBUNOV, A. A. ; FORCHEL, A. ; HAWRYLAK, P. ; FAFARD, S. ; HINZER, K. ; REINECKE, T. L. ; WALCK, S. N. ; REITHMAIER, J. P. ; KLOPF, F. ; SCHÄFER, F.: Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 65 (2002), S. 195315
- [29] KAVOKIN, K.V.: Fine structure of the quantum-dot trion. In: *Phys. stat. sol. (a)* 195 (2003), S. 592
- [30] KOUDINOV, A. V. ; AKIMOV, I. A. ; KUSRAYEV, Yu. G. ; HENNEBERGER, F.: Optical and magnetical anisotropies of the hole states

- in Stranski-Krastanov quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 70 (2004), S. 241305(R)
- [31] FURDYNA, J.K.: Diluted magnetic semiconductors. In: *J. Appl. Phys.* 64 (1988), S. R29
 - [32] ASHCROFT, N. W. ; MERMIN, N. D.: *Solid State Physics*. Saunders College Publishing, 1976
 - [33] NOWAK, M. A. ; SYMKO, O. G. ; ZHENG, D. J. ; OSEROFF, S.: Magnetic phase diagram of $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ below the nearest neighbor percolation limit. In: *Physica B* 126 (1984), S. 469
 - [34] LARSON, B. E. ; HASS, K. C. ; EHRENREICH, H. ; CARLSSON, A. E.: Theory of exchange interactions and chemical trends in diluted magnetic semiconductors. In: *Phys. Rev. B* 37 (1988), S. 4137
 - [35] SCALBERT, D.: Spin-Lattice Relaxation in Diluted Magnetic Semiconductors. In: *phys. stat. sol. (b)* 193 (1996), S. 189
 - [36] LARSON, B. E. ; HASS, K. C. ; EHRENREICH, H. ; CARLSSON, A. E.: Exchange mechanisms in diluted magnetic semiconductors. In: *Sol. State Comm.* 56 (1985), S. 347
 - [37] FONER, S. ; SHAPIRA, Y. ; HEIMAN, D. ; BECLA, P. ; KERSHAW, R. ; DWIGHT, K. ; WOLD, A.: Magnetization steps in dilute magnetic semiconductors to 55 T: Mn^{2+} pair saturation in $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ and steps in $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$, $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$, and $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$. In: *Phys. Rev. B* 39 (1989), S. 11793
 - [38] GOEDE, O. ; HEIMBRODT, W.: Optical Properties of (Zn, Mn) and (Cd, Mn) Chalcogenide Mixed Crystals and Superlattices. In: *phys stat. sol. (b)* 146 (1988), S. 11
 - [39] GAJ, J.A. ; PLANEL, R. ; FISHMAN, G.: Relation of magneto-optical properties of free excitons to spin alignment of Mn^{2+} Ions in $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$. In: *Sol. State Comm.* 29 (1979), S. 435
 - [40] KRATZERT, P.R. ; PULS, J. ; RABE, M. ; HENNEBERGER, F.: Growth and magneto-optical properties of sub 10 nm (Cd,Mn)Se quantum dots. In: *Appl. Phys. Lett.* 79 (2001), S. 2814
 - [41] GINDELE, F. ; WOGGON, U. ; LANGBEIN, W. ; HVAM, J. M. ; LEONARDI, K. ; HOMMEL, D. ; SELKE, H.: Excitons, biexcitons, and phonons in

- ultrathin CdSe/ZnSe quantum structures. In: *Phys. Rev. B.* 60 (1999), S. 8773
- [42] WOGGON, U. ; GINDELE, F. ; LANGBEIN, W. ; HETTERICH, M.: Exchange Interaction in II-VI Quantum Dots and Wells. In: *Phys. Stat. Sol. (a)* 164 (1997), S. 505
- [43] NIRMAL, M. ; NORRIS, D.J. ; KUNO, M. ; BAWENDI, M.G. ; EFROS, A.L. ; ROSEN, M.: Observation of the “Dark Exciton” in CdSe Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 75 (1995), S. 3728
- [44] BIR, G. L. ; PIKUS, G. E.: *Symmetry and Strain-induced Effects in Semiconductors*. Wiley, New York, 1974. – ISBN 0470073217
- [45] RABE, M. ; LOWISCH, M. ; KRELLER, F. ; HENNEBERGER, F.: Self-assembled CdSe quantum dot formation by thermally activated surface reorganization. In: *J. Cryst. Growth* 184/185 (1998), S. 284
- [46] YAO, T.: Characterization of ZnSe grown by molecular beam epitaxy. In: *J. Cryst. Growth* 72 (1985), S. 31
- [47] LITVINOV, D. ; ROSENAUER, A. ; GERTHSEN, D. ; KRATZERT, P. ; RABE, M. ; HENNEBERGER, F.: Influence of the growth procedure on the Cd distribution in CdSe/ZnSe heterostructures: Stranski Krastanov versus two-dimensional islands. In: *Appl. Phys. Lett.* 81 (2002), S. 640
- [48] ROSENAUER, A. ; GERTHSEN, D.: Composition evaluation by the lattice fringe analysis method using defocus series. In: *Ultramicroscopy* 76 (1999), S. 49
- [49] PERANIO, N. ; ROSENAUER, A. ; GERTHSEN, D. ; SOROKIN, S. V. ; SEDOVA, I. V. ; IVANOV, S. V.: Structural and chemical analysis of CdSe/ZnSe nanostructures by transmission electron microscopy. In: *Phys. Rev. B* 61 (2000), S. 16015
- [50] LITVINOV, D. ; ROSENAUER, A. ; GERTHSEN, D. ; LEDENSOV, N. N.: Character of the Cd distribution in ultrathin CdSe layers in a ZnSe matrix. In: *Phys. Rev. B* 61 (2000), S. 16819
- [51] KRATZERT, P.R.: *Molekularstrahlepitaxie von II-VI Quantenpunkten*, Institut für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 2002
- [52] LOWISCH, M.: *Exzitonen in (Zn,Cd)Se und CdSe Quantenstrukturen - Vom Lokalisationsplatz zum Quantenpunkt*, Institut für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diss., 1998

- [53] HUNDT, A.: *Spektroskopische Untersuchungen an einzelnen Cd-Se/ZnSe Halbleiterquantenpunkten*, Institut für Physik, Humboldt-Universität zu Berlin, Diplomarbeit, 2001
- [54] LOWISCH, M. ; RABE, M. ; KRELLER, F. ; HENNEBERGER, F.: Electronic excitations and longitudinal optical phonon modes of self-assembled CdSe quantum dots revealed by microprobe studies. In: *Appl. Phys. Lett.* 74 (1999), S. 2489
- [55] ROGASCHESKI, S.: *Persönliche Mitteilungen*. 2001
- [56] SEUFERT, J. ; OBERT, M. ; WEIGAND, R. ; KÜMMELL, T. ; BACHER, G. ; FORCHEL, A. ; LEONARDI, K. ; HOMMEL, D.: Correlated Temporal Fluctuations and Random Intermittency of Optical Transitions in a Single Quantum Dot. In: *Phys. stat. sol. (b)* 224 (2001), S. 201
- [57] PANEV, N. ; PISTOL, M.E. ; PERSSON, J. ; SEIFERT, W. ; SAMUELSON, L.: Spectroscopic studies of random telegraph noise in small InP quantum dots in $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{P}$. In: *Phys. Rev. B* 70 (2004), S. 073309
- [58] NIRMAL, M. ; DABBOUSI, B. O. ; BAWENDI, M. G. ; MACKLIN, J. J. ; TRAUTMAN, J. K. ; HARRIS, T. D. ; BRUS, L. E.: Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals. In: *Nature (London)* **383** (1996), S. 802
- [59] GUTOWSKI, J. ; PRESSER, N. ; KUDLEK, G.: Optical properties of ZnSe epilayers and Films. In: *Phys. Stat. Sol. (a)* 120 (1990), S. 11
- [60] ABRAMOWITZ, M. ; STEGUN, I. A.: *Handbook of mathematical functions*. Dover Publications, 1974. – ISBN 0486612724
- [61] KLIGER, D. S. ; LEWIS, J. W. ; RANDALL, C. E.: *Polarized Light in Optics and Spectroscopy*. Academic Press, 1990. – ISBN 0124149758
- [62] LAURENT, S. ; SENES, M. ; KREBS, O. ; KALEVICH, V. K. ; URBASZEK, B. ; MARIE, X. ; AMAND, T. ; VOISIN, P.: Negative circular polarization as a general property of n-doped self-assembled InAs/GaAs quantum dots under nonresonant optical excitation. In: *Phys. Rev. B* 73 (2006), S. 235302
- [63] CORTEZ, S. ; KREBS, O. ; LAURENT, S. ; SENES, M. ; MARIE, X. ; VOISIN, R. ; FERREIRA, R. ; BASTARD, G. ; GÉRARD, J.M. ; AMAND, T.: Optically Driven Spin Memory in n-Doped InAs-GaAs Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002), S. 207401

- [64] DZHIOEV, R.I. ; ZAKHARCHENYA, B.P. ; KORENEV, V.L. ; PAK, P.E. ; VINOKUROV, D.A. ; KOVALENKO, O.V. ; TARASOV, I.S.: Optical orientation of donor-bound excitons in nanosized InP/InGaP islands. In: *Phys. Solid State* **40** (1998), S. 1587
- [65] IGNATIEV, I. V. ; GERLOVIN, I. Y. ; VERBIN, S. Y. ; YUGOVA, I. A. ; MASUMOTO, Y.: Long-lived spin polarisation in the charged InP quantum dots. In: *Physica E (Amsterdam)* **17** (2003), S. 361
- [66] BRACKER, A. S. ; STINAFF, E. A. ; GAMMON, D. ; WARE, M. E. ; TISCHLER, J. G. ; SHABAEV, A. ; EFROS, AL. L. ; PARK, D. ; GERSHONI, D. ; KORENEV, V. L. ; MERKULOV, I. A.: Optical Pumping of the Electronic and Nuclear Spin of Single Charge-Tunable Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* **94** (2005), S. 047402
- [67] SCHEIBNER, M. ; BACHER, G. ; WEBER, S. ; FORCHEL, A. ; PASSOW, Th. ; HOMMEL, D.: *Polarization dynamics in self-assembled Cd-Se/ZnSe quantum dots: The role of excess energy.* 2003
- [68] MEIER, F. ; ZAKHARCHENYA, B. P.: *Optical Orientation.* North-Holland, Amsterdam, 1984 (Modern problems in Condensed Matter Sciences 8). – ISBN 0444867414
- [69] FLISSIKOWSKI, T. ; HUNDT, A. ; LOWISCH, M. ; RABE, M. ; HENNEBERGER, F.: Photon Beats from a Single Semiconductor Quantum Dot. In: *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001), S. 3172
- [70] FLISSIKOWSKI, T. ; AKIMOV, I. A. ; HUNDT, A. ; HENNEBERGER, F.: Single-hole spin relaxation in a quantum dot. In: *Phys. Rev. B* **68** (2003), S. 161309(R)
- [71] HUNDT, A. ; FLISSIKOWSKI, T. ; LOWISCH, M. ; RABE, M. ; HENNEBERGER, F.: Excitation Spectrum, Relaxation and Coherence of Single self-Assembled CdSe Quantum Dots. In: *Phys. Stat. Sol. (b)* **224** (2001), S. 159
- [72] KESTEREN, H. W. ; COSMAN, E. C. ; POEL, W. A. J. A. d. ; FOXON, C.T.: Fine structure of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells. In: *Phys. Rev. B* **41** (1990), S. 5283
- [73] BESOMBES, L. ; KHENG, K. ; MARSAL, L. ; MARIETTE, H.: Excited states and multi-exciton complexes in single CdTe quantum dots. In: *Europhys. Lett.* **65** (2004), S. 144

- [74] AKIMOV, I. A. ; FLISSIKOWSKI, T. ; HUNDT, A. ; HENNEBERGER, F.: Spin processes related to trions in quantum dots. In: *Phys. Stat. sol. (a)* 201 (2004), S. 412
- [75] KUMAR, J.: *Hole energy levels of a quantum dot*. 2005
- [76] LEMAÎTRE, A. ; ASHMORE, A.D. ; J.J.FINLEY ; MOWBRAY, D.J. ; SKOLNICK, M.S. ; HOPKINSON, M. ; KRAUSS, T.F.: Enhanced phonon-assisted absorption in single InAs/GaAs quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 63 (2001), S. 161309(R)
- [77] AKIMOV, I.A. ; HUNDT, A. ; FLISSIKOWSKI, T. ; HENNEBERGER, F.: Fine structure of the trion triplet state in a single self-assembled semiconductor quantum dot. In: *Appl. Phys. Lett.* 81 (2002), S. 4730
- [78] KAVOKIN, K.V.: Symmetry of anisotropic exchange interaction in semiconductor nanostructures. In: *Phys. Rev. B* 69 (2004), S. 075302
- [79] WOJS, A. ; HAWYLAKE, P.: Negatively charged magnetoexcitons in quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 51 (1995), S. 10880
- [80] WARBURTON, R. J. ; MILLER, B. T. ; DÜRR, C. S. ; BÖDEFELD, C. ; KARRAI, K. ; KOTTHAUS, J. P. ; MEDEIROS-RIBEIRO, G. ; PETROFF, P. M. ; HUANT, S.: Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots: A simple model. In: *Phys. Rev. B* 58 (1998), S. 16221
- [81] URBASZEK, B. ; WARBURTON, R. J. ; KARRAI, K. ; GERARDOT, B. D. ; PETROFF, P. M. ; GARCIA, J. M.: Fine Structure of Highly Charged Excitons in Semiconductor Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003), S. 247403
- [82] KARIMOV, O. Z. ; WOLVERSON, D. ; DAVIES, S. I. J. J. and Stepanov S. J. J. and Stepanov ; RUF, T. ; IVANOV, S. V. ; SOROKIN, S. V. ; O'DONNELL, C. B. ; PRIOR, K.A.: Electron g-factor for cubic $\text{Zn}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Se}$ determined by spin-flip Raman scattering. In: *Phys. Rev. B* 62 (2000), S. 16582
- [83] VERZELEN, O. ; FERREIRA, R. ; BASTARD, G.: Excitonic Polarons in Semiconductor Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002), S. 146803
- [84] HAWRYLAK, P. ; NARVAEZ, G. A. ; BAYER, M. ; FORCHEL, A.: Excitonic Absorption in a Quantum Dot. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), S. 389

- [85] AKIMOV, I. A. ; HUNDT, A. ; FLISSIKOWSKI, T. ; KRATZERT, P. ; HENNEBERGER, F.: Energy spectrum of a negatively charged single quantum dot: trion and charged biexciton states. In: *Physica E* 17 (2003), S. 31
- [86] WARE, M. E. ; STINAFF, E. A. ; GAMMON, D. ; DOTY, M. F. ; BRACKER, A. S. ; GERSHONI, D. ; KORENEV, V. L. ; BADESCU, S. C. ; LYANDA-GELLER, Y. ; REINECKE, T. L.: Polarized Fine Structure in the Photoluminescence Excitation Spectrum of a Negatively Charged Quantum Dot. In: *Phys. Rev. Lett.* 95 (2005), S. 177403
- [87] VASANELLI, A. ; FERREIRA, G. R. and B. R. and Bastard: Continuous Absorption Background and Decoherence in Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002), S. 216804
- [88] KHAETSKII, A. V. ; NAZAROV, Y. V.: Spin relaxation in semiconductor quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 61 (2000), S. 12639
- [89] AKIMOV, I. A. ; FENG, D. H. ; HENNEBERGER, F.: Electron Spin Dynamics in a Self-Assembled Semiconductor Quantum Dot: The Limit of Low Magnetic Fields. In: *Phys. Rev. Lett.* 97 (2006), S. 056602
- [90] BHATTACHARJEE, A. K.: Confinement-induced reduction of the effective exchange parameters in semimagnetic semiconductor nanostructures. In: *Phys. Rev. B* 58 (1998), S. 15660
- [91] MACKH, G. ; OSSAU, W. ; WAAG, A. ; LANDWEHR, G.: Effect of the reduction of dimensionality on the exchange parameters in semimagnetic semiconductors. In: *Phys. Rev. B* 54 (1996), S. R5227
- [92] DIETL, T. ; SPALEK, J.: Effect of Fluctuations of Magnetization on the Bound Magnetic Polaron: Comparison with Experiment. In: *Phys. Rev. Lett.* 48 (1983), S. 355
- [93] FURDYNA, J. K. (Hrsg.) ; KOSSUT, J. (Hrsg.): *Semiconductors and Semimetals*. Bd. 25: *Diluted magnetic semiconductors*. Academic Press, London, 1988
- [94] ROSSIN, V. V. ; HENNEBERGER, F. ; PULS, J.: Magnetic-field-induced formation of exciton magnetic polarons in $\text{ZnSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ quantum-well structures. In: *Phys. Rev. B* 53 (1996), S. 16444
- [95] MAKSIMOV, A.A. ; BACHER, G. ; McDONALD, A. ; KULAKOVSKII, V.D. ; FORCHEL, A. ; BECKER, C.R. ; LANDWEHR, G. ; MOLENKAMP,

- L.W.: Magnetic polarons in a single diluted magnetic semiconductor quantum dot. In: *Phys. Rev. B* 62 (2000), S. R7767
- [96] SEUFERT, J. ; BACHER, G. ; SCHEIBNER, M. ; FORCHEL, A. ; LEE, S. ; DOBROWOLSKA, M. ; FURDYNA, J.K.: Dynamical Spin Response in Semimagnetic Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002), S. 027402
- [97] PULS, J.: *persönliche Mitteilungen.* 2001
- [98] SCHERBAKOV, A.V. ; AKIMOV, A.V. ; YAKOVLEV, D.R. ; OSSAU, W. ; MOLENKAMP, L.W. ; TERA, Y. ; KURODA, S. ; TAKITA, K. ; SOUMA, I. ; OKA, Y.: Spin-Lattice Relaxation Study in Diluted Magnetic Semiconductor Quantum Wells and Quantum Dots. In: *phys. stat. sol. (b)* 241 (2003), S. 361
- [99] NAWROCKI, N. ; RUBO, Yu.G. ; LASCARAY, J.P. ; COQUILLAT, D.: Suppression of the Auger recombination due to spin polarization of excess carriers and Mn^{2+} ions in the semimagnetic semiconductor $\text{Cd}_{0.95}\text{Mn}_{0.05}\text{S}$. In: *Phys. Rev. B* 52 (1995), S. R2241
- [100] CHERNENKO, A. V. ; DOROZHNIKIN, P. S. ; KULAKOVSKII, V. D. ; BRICHKIN, A. S. ; IVANOV, S. V. ; TOROPOV, A. A.: Auger recombination of excitons in semimagnetic quantum dot structure in a magnetic field. In: *Phys. Rev. B* 72 (2005), S. 045302
- [101] BACHER, G. ; MAKSIMOV, A.A. ; SCHÖMIG, H. ; KULAKOVSKII, V.D. ; WELSCH, M.K. ; FORCHEL, A. ; DOROZHNIKIN, P.S. ; CHERNENKO, A.V. ; LEE, S. ; DOBROWOLSKA, M. ; FURDYNA, J.K.: Monitoring Statistical Magnetic Fluctuations on the Nanometer Scale. In: *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002), S. 127201
- [102] BESOMBES, L. ; LÉGER, Y. ; MAINGAULT, L. ; FERRAND, D. ; MARIETTE, H. ; CIBERT, J.: Probing the Spin State of a Single Magnetic Ion in an Individual Quantum Dot. In: *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), S. 207403
- [103] LÉGER, Y. ; BESOMBES, L. ; MAINGAULT, L. ; FERRAND, D. ; MARIETTE, H.: Geometrical Effects on the Optical Properties of Quantum Dots Doped with a Single Magnetic Atom. In: *Phys. Rev. Lett.* 95 (2005), S. 047403
- [104] LOZYKOWSKI, H.J. ; SHASTRI, V.K.: Excitonic and Raman properties of $\text{ZnSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Se}$ strained-layer quantum wells. In: *J. Appl. Phys* 69 (1991), S. 3235

- [105] KRATZERT, P. R.: *persönliche Mitteilungen*. 2001
- [106] BRAZIS, R. ; KOSSUT, J.: Role of magnetic fluctuations in the luminescence line width of small systems. In: *Solid State Comm.* 122 (2002), S. 73
- [107] BEHRINGER, R.E.: Number of Single, Double, and Triple Clusters in a System Containing Two Types of Atoms. In: *J. Chem. Phys.* 29 (1958), S. 537
- [108] MERKULOV, I.A. ; POZINA, G.R. ; COQUILLAT, D. ; PAGANOTTO, N. ; SIVINANT, J. ; LASCARAY, J.P. ; CIBERT, J.: Parameters of the magnetic polaron state in diluted magnetic semiconductors Cd-Mn-Te with low manganese concentration. In: *Phys. Rev. B* 54 (1996), S. 5727
- [109] DIETL, T.: Optical properties of donor electrons in semimagnetic semiconductors. In: *J. Magn. Mater.* 38 (1983), S. 34
- [110] SCHERBAKOV, A.V. ; AKIMOV, A.V. ; YAKOVLEV, D.R. ; OSSAU, W. ; LANDWEHR, G. ; WOJTOWICZ, T. ; KARCZEWSKI, G. ; KOSSUT, J.: Spin-lattice relaxation in semimagnetic CdMnTe/CdMgTe quantum wells. In: *Phys. Rev. B* 62 (2000), S. R10641
- [111] FARAH, W. ; SCALBERT, D. ; NAWROCKI, M.: Magnetic relaxation studied by transient reflectivity in $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$. In: *Phys. Rev. B* 53 (1996), S. R10461
- [112] STRUTZ, T. ; WITOWSKI, A.M. ; WYDER, P.: Spin-Lattice Relaxation at High Magnetic Fields. In: *Phys. Rev. Lett* 68 (1992), S. 3912
- [113] YAKOVLEV, D.R. ; KNEIP, M. ; MAKSIMOV, A.A. ; TARTAKOVSKII, I.I. ; BAYER, M. ; OSSAU, W. ; MOLENKAMP, L.W. ; AKIMOV, A.V. Scherbakov A. ; WAAG, A.: Spin and energy transfer between magnetic ions and free carriers in diluted-magnetic semiconductor heterostructures. In: *phys. stat. sol. (c)* 1 (2004), S. 989
- [114] KOUDINOV, A.V. ; KUSRAYEV, Yu.G. ; AKSYANOV, I.G.: Light-induced heating effects in semimagnetic quantum wells. In: *Phys. Rev. B* 68 (2003), S. 085315
- [115] KELLER, D. ; YAKOVLEV, D.R. ; KÖNIG, B. ; OSSAU, W. ; GRUBER, T. ; WAAG, A. ; MOLENKAMP, L.W. ; SCHERBAKOV, A.V.: Heating of the magnetic ion system in (Zn,Mn)Se/(Zn,Be)Se semimagnetic quantum wells by means of photoexcitation. In: *Phys. Rev. B* 65 (2001), S. 035313

- [116] KÖNIG, B. ; MERKULOV, I.A. ; D.R.YAKOVLEV ; OSSAU, W. ; RYABCHENKO, S.M. ; KUTROWSKI, M. ; WOJTOWICZ, T. ; KARCZEWSKI, G. ; KOSSUT, J.: Energy transfer from photocarriers into the magnetic ion system mediated by a two-dimensional electron gas in (Cd,Mn)Te/(Cd,Mg)Te quantum wells. In: *Phys. Rev. B* 61 (2000), S. 16870
- [117] SCHERBAKOV, A.V. ; YAKOVLEV, D.R. ; AKIMOV, A.V. ; MERKULOV, I.A. ; KÖNIG, B. ; OSSAU, W. ; MOLENKAMP, L.W. ; WOJTOWICZ, T. ; KARCZEWSKI, G. ; CYWINSKI, G. ; KOSSUT, J.: Acceleration of the spin-lattice relaxation in diluted magnetic quantum wells in the presence of a two-dimensional electron gas. In: *Phys. Rev. B* 64 (2001), S. 155205
- [118] ABRAGAM, A. ; BLEANEY, B.: *Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions*. Clarendon Press, Oxford, 1970
- [119] ORBACH, R.: Spin-lattice relaxation in rare-earth salts. In: *Proc. Roy. Soc. (London)* A264 (1961), S. 458
- [120] MSALL, M.E. ; WOLFE, J.P.: Phonon production in weakly photoexcited semiconductors: Quasidiffusion in Ge, GaAs, and Si. In: *Phys. Rev. B* 56 (1997), S. 9557
- [121] MORIYA, T.: Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism. In: *Phys. Rev.* 120 (1960), S. 91
- [122] DZIALOSHINSKII, I.: A thermodynamic theory of “weak“ ferromagnetism of antiferromagnetics. In: *Phys. Chem. Solids* 4 (1958), S. 241
- [123] BARTHOLOMEW, D.U. ; SHUH, E.-K. ; RODRIGUEZ, S. ; RAMDAS, A.K. ; AGGARWAL, R.L.: Raman Scattering from antiferromagnetically coupled Mn^{2+} ion pairs in $Cd_{1-x}Mn_xS$ and $Cd_{1-x}Mn_xSe$. In: *Solid State Commun.* 62 (1987), S. 235
- [124] WANG, X. ; DAHL, M. ; HEIMAN, D. ; WOLFF, P.A. ; BECLA, P.: Spin-lattice Relaxation of spin pairs in CdSe:Mn by the Dzyaloshinski-Moriya exchange interaction. In: *Phys. Rev. B* 46 (1992), S. R11216
- [125] WITOWSKI, A.M. ; STRUTZ, T. ; KUTTER, Ch. ; WYDER, P: Magnetization and spin-lattice relaxation in semimagnetic semiconductors at high magnetic fields. In: *Physica B* 211 (1995), S. 372

- [126] LARSON, B. E. ; HASS, K. C. ; AGGARWAL, R. L.: Effects of internal exchange fields on magnetization steps in diluted magnetic semiconductors. In: *Phys. Rev. B* 33 (1986), S. 1789
- [127] KREITMAN, M.M. ; BARNETT, D.L.: Probability Tables for Clusters of Foreign Atoms in Simple Lattices Assuming Next-Nearest-Neighbor Interactions. In: *J. Chem. Phys.* 43 (1965), S. 364
- [128] LUTTINGER, J. M. ; KOHN, W.: Motion of Electrons and Holes in Perturbed Periodic Fields. In: *Phys. Rev.* 97 (1955), S. 869
- [129] BOCKELMANN, U. ; BASTARD, G.: Interband absorption in quantum wires. I. Zero-magnetic-field case. In: *Phys. Rev. B* 45 (1992), S. 1688
- [130] JÜRGEN KALLIES, Prof. em.: *Persönliche Mitteilungen.* 2005

Anhang A

Zur Kopplung zwischen leichten und schweren Löchern

Um Aussagen über das Energiespektrum der Löcher in Nanostrukturen zu erhalten, wird die Methode der Invarianten [25, 44] verwendet. Nach Luttinger [128] lässt sich der Hamiltonoperator des Γ_8 -Valenzbandes wie folgt schreiben:

$$\mathcal{H}_{\text{Lutt}}(\vec{k}) = \begin{pmatrix} F & H & I & 0 \\ H^* & G & 0 & I \\ I^* & 0 & G & -H \\ 0 & I^* & -H^* & F \end{pmatrix}. \quad (\text{A.1})$$

Als Basisfunktionen werden hierbei die Eigenfunktionen des Drehimpulsoperators ($j = \frac{3}{2}, j_{z,h} = \pm\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}$) in der kanonischen Basis $|+\frac{3}{2}\rangle, |+\frac{1}{2}\rangle, |-\frac{1}{2}\rangle, |-\frac{3}{2}\rangle$ verwendet. Das durch Spin-Bahn-Austausch abgespaltene Band wird vernachlässigt. Die Wellenfunktion der Löcher wird separiert in einen Blochanteil $u_{j_{z,h}}(\vec{r})$ und eine Einhüllende $\phi(\vec{r})$.

$$\psi(\vec{r}) = \sum_{j_{z,h}} \phi(\vec{r}) u_{m_j}(\vec{r}). \quad (\text{A.2})$$

Der Hamiltonian (A.1) enthält das Potential des betrachteten Systems. Wenn der Wellenvektor wie folgt ausgedrückt wird: $\vec{k} = -i\nabla$, sind die Parameter wie folgt definiert (in Einheiten von $\frac{\hbar^2}{2m}$) :

$$F = -\gamma_1 \Delta - \gamma_2 \left(\Delta - 3 \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + V(\vec{r}), \quad G = -\gamma_1 \Delta + \gamma_2 \left(\Delta - 3 \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) + V(\vec{r}),$$
$$H = -2\sqrt{3}\gamma_2 \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial}{\partial x} - i \frac{\partial}{\partial y} \right), \quad I = \sqrt{3}\gamma_2 \left(\frac{\partial}{\partial x} - i \frac{\partial}{\partial y} \right)^2.$$

Hierbei wurde die sphärische Näherung benutzt ($\gamma_2 \approx \gamma_3$), mit γ_1 und γ_2 sind die so genannten Luttinger Parameter bezeichnet, sie haben halbleiterspezifische Werte.

Zur Berechnung der Lochzustände in einem QP mit Anisotropie wird ein parabolisches Potential in x - und y -Richtung wie folgt gewählt [75]:

$$V(\vec{r}) = V_z(z) + \frac{1}{2} (\alpha_x x^2 + \alpha_y y^2). \quad (\text{A.3})$$

Das Potential in z -Richtung wird nicht speziell definiert und stellt einen variablen Parameter der QP-Struktur dar.

Durch Lösen der Schrödingergleichung erhält man die Funktionen der Einhüllenden als Eigenfunktionen. Diese werden zweckmäßig ausgedrückt in der Basis des harmonischen Oszillators. *Ohne* Kopplung zwischen leichten und schweren Löchern erhält man separat

$$\phi_l^{n_x}(x)\phi_l^{n_y}(y); \quad \phi_h^{n_x}(x)\phi_h^{n_y}(y) \quad (\text{A.4})$$

als Produktzustände für die beiden Dimensionen x und y . *Mit* Kopplung setzt sich der n -te Zustand $|\psi_n\rangle$ zusammen aus

$$|\psi_n\rangle = \sum_{n'} a_{n'}^n \phi_{n'}(x, y) u_{j_{z,h}}. \quad (\text{A.5})$$

Mit $n' = (n'_x, n'_y, m_j)$ ist ein Satz von Quantenzahlen zum n -ten Eigenvektor mit den Komponenten $a_{n'}^n$ bezeichnet. Mit einigen Umformungen kann die Anisotropie A als wichtiger Parameter ausgedrückt werden als

$$A = \frac{\omega_x - \omega_y}{\omega_x + \omega_y}, \quad (\text{A.6})$$

wobei sich die Frequenzen $\omega_{x,y}$ aus den Luttingerparametern und $\alpha_{x,y}$ aus Gleichung (A.3) berechnen. Als zweiter Parameter ist der Energieoffset B zwischen leichten und schweren Löchern bezeichnet und kann an die experimentellen Ergebnisse angepasst werden. Er ist mit dem Einsperrpotential in z -Richtung korreliert.

Nicht jeder Übergang ist optisch erlaubt. Die Dipol-Matrixelemente der beteiligten Zustände berechnen sich mit den zugehörigen Auswahlregeln für Einhüllende und Blochfunktion, letztere bestimmen dabei die Polarisation des Übergangs. Die Intensität eines Übergangs berechnet sich nach

$$I \propto |\langle \vec{e} \cdot \vec{p} | \psi_n \rangle|^2. \quad (\text{A.7})$$

Hierbei ist \vec{e} der Richtungsvektor der Polarisation und \vec{p} der Impuls [129].

Für den Grundzustand lässt sich vereinfacht annehmen: Der Luttinger Hamiltonian (A.1) lässt sich zerlegen in einen diagonalen Anteil $\mathcal{H}_{\text{diag}}$ und einen nicht-diagonalen Anteil \mathcal{H}_{nd} . Ist durch Dimensionsreduzierung oder Verspannung die Entartung zwischen leichten und schweren Löchern aufgehoben, lässt sich für den Grundzustand der nicht-diagonale Term störungstheoretisch behandeln. Um die Größe der Beimischung der Leichtloch-Wellenfunktionen an den schweren Löchern abzuschätzen, kann die Wellenfunktion der schweren Löcher wie folgt geschrieben werden:

$$\Psi_{\pm} = \varphi_0^{\text{hh}} \left| \pm \frac{3}{2} \right\rangle + \sum_{j=\pm\frac{1}{2}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\langle \varphi_n^{\text{lh}} | \mathcal{H}_{\text{nd}} | \varphi_0^{\text{hh}} \rangle}{E_0^{\text{hh}} - E_n^{\text{lh}}} \varphi_n^{\text{lh}} |j\rangle. \quad (\text{A.8})$$

Hierbei wird nur der Störungsanteil, der durch die leichten Löcher verursacht wird, berücksichtigt. Bei Beschränkung auf ein Band ($n = 0$) vereinfacht sich der Ausdruck zu

$$\begin{pmatrix} \Psi_+ \\ \Psi_- \end{pmatrix} = \varphi_0^{\text{hh}} \begin{pmatrix} \left| +\frac{3}{2} \right\rangle \\ \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \end{pmatrix} - \frac{\varphi_0^{\text{lh}}}{\Delta E_{\text{l-h}}} \begin{pmatrix} I \left| -\frac{1}{2} \right\rangle + H \left| +\frac{1}{2} \right\rangle \\ I^* \left| +\frac{1}{2} \right\rangle - H^* \left| -\frac{1}{2} \right\rangle \end{pmatrix}, \quad (\text{A.9})$$

mit der Abkürzung $\Delta E_{\text{l-h}} = E_0^{\text{hh}} - E_n^{\text{lh}}$. Von den beiden unterschiedlichen Spinzuständen des leichten Lochs, mit dem das schwere Loch koppelt, führt lediglich diejenige mit entgegengesetztem Spin zu dem des schweren Lochs zu einem beobachtbaren Übergang. Sind dagegen die Spinprojektionen des leichten und des schweren Lochs parallel, so stehen die Spinprojektionen vom leichten Loch mit dem Leitungsband-Elektron ebenfalls parallel und das Übergangsmatrixelement führt zu einer Polarisation in Ausbreitungsrichtung [68]. Gleichzeitig führt in (A.9) $H \neq 0$ zu einer Kopplung zwischen Ψ_x und Ψ_- und damit zu einer Quelle für Spinrelaxation.

Anhang B

Zum Gesamtspin eines Ensembles von Mn-Ionen

Ein einzelnes Mn-Ion im Kristallfeld mit der Konfiguration 6A_1 (Grundzustand) [31] besitzt sechs Einstellmöglichkeiten seines Gesamtspins $s_z = 5/2$ ¹. Ein Ensemble N unabhängiger Mn-Ionen besitzt 6^N mögliche Kombinationen, die sich auf $5N + 1$ verschiedene Einstellungen verteilen. Der Entartungsgrad $w_N(i)$ einer Einstellung $S_z = i \in \{-\frac{5}{2}N, \dots, +\frac{5}{2}N\}$, normiert durch Division durch 6^N , gibt danach dessen Wahrscheinlichkeit $P_N(S_z = i)$ für das Antreffen eines möglichen Gesamtspins $S_z = \sum_N s_z$ an und lässt sich exakt nur rekursiv gemäß

$$P_{N+1}(S_z = i) = \frac{1}{6} \sum_{j=i-5/2}^{i+5/2} P_N(S_z = j); \quad P_0(i) = \delta_{i,0} \quad (\text{B.1})$$

bestimmen. Eine direkte Berechnung ist nicht möglich [130]. Aus einfachen Symmetrieüberlegungen folgt $\langle S_z \rangle = 0 \quad \forall N$.

Eine näherungsweise Berechnung kann durch die Normalverteilung erfolgen, die durch den zentralen Grenzwertsatz legitimiert ist. Dieser besagt, dass eine Summe von vielen unabhängigen, beliebig verteilten Zufallsvariablen gleicher Größenordnung angenähert normalverteilt ist, und zwar umso besser, je größer ihre Anzahl ist. Allgemein:

Seien X_1, X_2, \dots, X_n unabhängige Zufallsvariable und $Y_N := X_1 + X_2 + \dots + X_n$ deren Summe. Jedes X_i kann Werte $x \in \mathbb{R}$ annehmen. Dann gilt für die Wahrscheinlichkeiten P :

$$\lim_{N \rightarrow \infty} P(Y \leq x) = \Phi\left(\frac{x - \mu}{\sigma}\right) \quad \text{mit } \mu := \sum_{j=1}^n E(x_j) \text{ und } \sigma^2 = \sum_{j=1}^n V(x_j). \quad (\text{B.2})$$

¹Für den Spin werden hier kleine Buchstaben für ein einzelnes Teilchen und große für das Ensemble verwendet.

Dabei ist Φ die Wahrscheinlichkeits- bzw. Verteilungsfunktion der standardisierten Normalverteilung, E der Erwartungswert und V die Varianz der entsprechenden Zufallsvariablen.

Im Falle eines Manganions sei $X = S_z$ die Spinprojektion. Diese Zufallsvariable ist gleichverteilt mit $P(X) = k = 1/6$,

$$\begin{aligned}\mu = E(X) &= \sum_{j=-5/2}^{+5/2} j P(X = j) = 0, \\ \sigma^2 = V(X) &= \sum_{j=-5/2}^{+5/2} (j - \mu) P(X = j) = \frac{35}{12}.\end{aligned}\tag{B.3}$$

Bei N Ereignissen ergibt sich mit den Formeln

$$\begin{aligned}E(Y) &= E(X_1) + \cdots + E(X_N), \\ V(Y) &= V(X_1) + \cdots + V(X_N),\end{aligned}\tag{B.4}$$

bzw. bei identischen Zufallsverteilungen $X := X_1 = \cdots = X_N$ mit $E(X) = \mu$, $V(X) = \sigma^2$:

$$E(Y_N) = N\mu, \quad V(Y_N) = N\sigma^2.\tag{B.5}$$

In der Skizze B.1 ist zu erkennen, dass bereits für $N = 3$ die relevanten Wahrscheinlichkeiten² ausreichend durch eine Normalverteilung approximiert werden.

²d.h. für kleine Werte von S_z

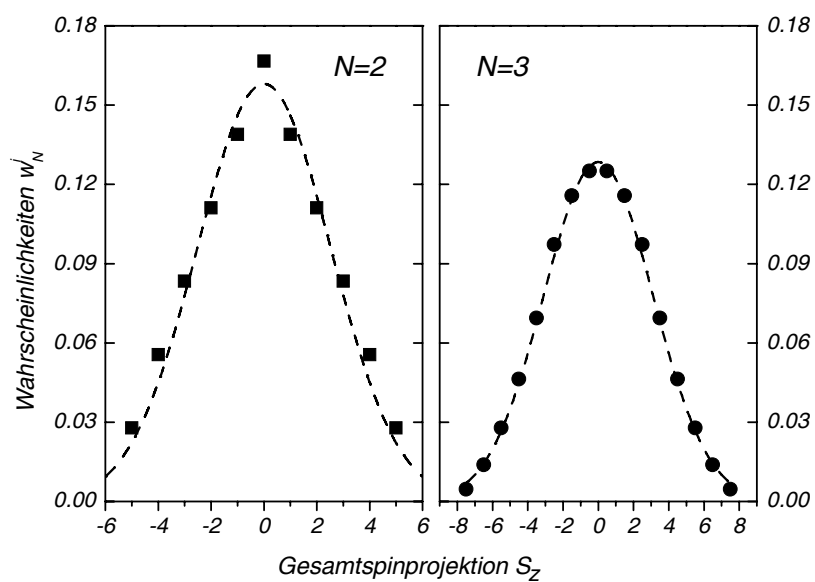


Abbildung B.1: Punkte: Wahrscheinlichkeiten w_N^i für $N = 2$ (links) und $N = 3$ (rechts) Gestrichelte Linien: Fit mit Normalverteilung.

Danksagung

Herrn Professor Dr. F. Henneberger danke ich für die Möglichkeit, in seiner Arbeitsgruppe dieses herausfordernde Thema zu bearbeiten. Sein stets offenes Ohr für neueste Ergebnisse sowie seine Anregungen haben sehr zum Entstehen dieser Arbeit beigetragen.

Weiter bedanke ich mich bei den Mitarbeitern der Arbeitsgruppe „Physikalische Grundlagen der Photonik“, insbesondere bei Herrn Dr. J. Puls für zahllose Hilfestellungen und Diskussionen und für die Betreuung während der gesamten Zeit. Herrn Dr. I. Akimov danke ich für die Übernahme der Zweitkorrektur sowie für viele ergebnisreiche Stunden im Labor und im Büro. Bei Herrn Dr. T. Flissikowski bedanke ich mich für die große Unterstützung und tatkräftiges Knowhow bei vielen Experimenten.

Ohne die große Unterstützung auf technischer und elektronischer Seite von Herrn Dr. I. Dudeck wären oft die Lichter aus gegangen. Danke dafür. Ebenso danke ich Herrn Dr. P. Kratzert und der AFM Gruppe für die Versorgung mit Proben und Herrn Dr. S. Rogaschewski für die Strukturierung der Proben.

Des weiteren danke ich S. Czaja und G. Chusainow für die Unterstützung insbesondere auf administrativer Seite, Dr. U. Preppernau für zahlreiche Überstunden, die aus meiner Gier nach flüssigem Helium resultierten, und Herrn G. Rohde für die Herstellung von allerlei (Fein-)Mechanik.

Dem Rest der Arbeitsgruppe sowie den Herren K.V. Kavokin, J. Kumar, A.V. Akimov und A.V. Koudinov ein Dankeschön für viele angenehme und fruchtbare Diskussionen.

Den ungezählten Quantenpunkten, die für die Wissenschaft ihr Leben ließen, ein stilles Gedenken. Mögen sie in Ehren ruhen.

Selbständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, die vorliegende Arbeit selbständig ohne fremde Hilfe verfasst und nur die angegebene Literatur und Hilfsmittel verwendet zu haben.

Ich habe mich anderwärts nicht um einen Doktorgrad beworben und besitze einen entsprechenden Doktorgrad nicht.

Ich erkläre die Kenntnisnahme der dem Verfahren zugrunde liegenden Promotionsordnung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I der Humboldt-Universität zu Berlin.

14. Dezember 2006

Andreas Hundt